



ELSEVIER

Contents lists available at [SciVerse ScienceDirect](http://www.sciencedirect.com)

## Comptes Rendus Physique

[www.sciencedirect.com](http://www.sciencedirect.com)

Physique : Revue

Réflexions sur l'avenir de l'énergie nucléaire, de la France d'aujourd'hui au monde de demain : II<sup>e</sup> à IV<sup>e</sup> générations*Nuclear energy in France today and tomorrow: IInd to IVth generations*

Robert Dautray\*, Jacques Friedel, Yves Bréchet

Académie des Sciences, 23 quai Conti, 75006 Paris, France

## I N F O A R T I C L E

*Historique de l'article :*

Disponible sur Internet le 6 mai 2012

*Mots-clés :*

Nucléaire et cycle du combustible  
Sûreté, sécurité, radioprotection  
Centrales, démantèlement, déchets  
MOX, plutonium  
Laboratoires souterrains, entreposage,  
stockage  
Piscines, refroidissement, radioactivité,  
matières du cycle et prolifération

*Keywords:*

Nuclear energy and nuclear fuel cycle  
Safety, security, radiation protection  
Power plants, decommissioning, wastes  
Plutonium  
Underground laboratory, storage, disposal  
Pools, cooling, radioactivity, proliferation

## R É S U M É

Les événements récents de Fukushima ont mis en lumière des questions de fond qui doivent être prise en compte pour analyser la position de l'énergie nucléaire dans le mix énergétique à venir, dans le contexte du réchauffement climatique, de l'épuisement des ressources pétrolières, de l'explosion démographique et du développement industriel rapide. On aborde ici ces problèmes du point de vue de la physique; et sans prétendre proposer des choix définitifs, cet article a pour objectif d'informer sur les équipements nécessaires pour bénéficier de l'énergie de fission, sur les incidents et accidents possibles, sur l'utilisation militaire des ressources nucléaires. On s'attachera particulièrement aux questions d'estimation et de gestion du risque, de prolifération nucléaire, et d'indépendance énergétique. On insistera tout particulièrement sur le cycle du combustible nucléaire, et sur les implications du développement de la génération IV, et en particulier, des surgénérateurs. Les leçons à tirer de Fukushima, en particulier sur les puissances résiduelles du combustible usagé, et les conséquences sur les différentes échelles de temps pertinentes seront dégagées.

© 2012 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

## A B S T R A C T

The recent events at the Fukushima power plants (PP) have brought to light key issues which have to be discussed concerning the position of nuclear energy in the energy mix, in the context of global warming, of waning petroleum resources, of an increasing world population, and of its industrial development. These questions are addressed here from the viewpoint of physical facts; and, without proposing definite choices, this article aims to provide information on the equipment required to benefit from the fission chain reaction, while explaining the possible incidents and accidents, and the possible hidden military misuse of nuclear matter. Specific issues, such as risk assessment and risk management, will be considered, under the constraints of dealing with international non-proliferation safeguards and France energy resources independence. A special emphasis will be given on the fuel cycle, on the variety of time scales involved, and on the requirements of developing the next generation of nuclear power plants, and more specifically the fast breeder option. The lessons to be drawn from the Fukushima accident, resulting mainly from the residual power of used fuel and the loss of cooling source, are outlined, and the consequences to be drawn about the various relevant time scales are emphasized.

© 2012 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

\* Auteur correspondant.

## Abridged English version

### *In France today: some key issues*

The development in France, in the last 40 years, of an electronuclear park with a remarkable homogeneity (one concept, the PWR, one constructor and one producer) is an asset in terms of industrial efficiency, feedback on past experience, and safety. This has provided energetic independence and has contributed to the defense policy of the country. In the context of climate change, this has positioned France in a favorable position with respect to the renewed interest in nuclear energy for almost the entire world. However, and especially in the light of the recent accident in Fukushima, some **key issues** have to be addressed:

- *Back end of the cycle*: the main issue is the short term storage while the fuel is still hot, with an internal source of power, waiting to become colder, making use of an external cold source. This is especially relevant to the MOX used-fuel elements containing plutonium. The long term disposal has found a reasonable solution in the deep geological disposal.
- *Vulnerability, exposure and resilience of electronuclear systems*: The safety issue should not be addressed in terms of probabilities which develop the illusion that very different concepts can be compared in a reliable manner. Safety issues should be dealt with in terms of redundancy and ability of the system to sustain possible elementary accidental events without having a synergetic effect between them.
- *A risk for the development of the next generation*: the know-how specific to nuclear energy production is still present, but, due to the lack of building new plants before the launching of the new PWR reactor named EPR, and in relation to a general trend in the mechanical and structure material know-how of this country, some key activities such as casting or forging of large components, as well as the numerous steel productions, have to be subcontracted abroad.

### *Tomorrow, in Europe and in the world*

The distinction has to be made clear between the different generations of nuclear energy production systems: the present generation (and the EPR is in the same design family) relies on uranium; the next generation of fast breeders will rely on plutonium; the end of the story will deal with the disposal of high isotopic number actinides. These three levels each requires different types of research and are at different stages of development:

- PWR (Pressurized Water Reactor) Power Plant is an industrial device currently used, the main issues being the ageing of these Power Plants;
- Fast breeders are an option for which there exists a robust research and development infrastructure. An experience via a prototype and research installation is required for improving its development;
- Actinide transmutation is a topic of long term scientific research.

It is important to keep this distinction in mind while proposing industrially feasible options for nuclear energy production to the general public.

- *A variety of needs*: Electricity has been the landmark in the development of an industrial civilisation. Depending on the type of energy required (local in house usage, transportation, or industrial applications), on the human geography (agricultural or urban populations), and on the natural resources, the optimal energy mix may be different;
- *The need for fast breeders*: fast breeder reactors have the dual advantage of transforming plutonium (otherwise, in the majority of world power plants, a waste material), into a fuel, and of allowing the use of impoverished uranium as a nuclear resource instead of being a waste. This strategy allows one to multiply by a factor close to 80 the resources in nuclear fuel (with the addition of 40 years stock of already depleted uranium) and to ensure the energetic independence of a country like France, together with dealing with the problem of nuclear wastes in a much more comprehensive and efficient manner;
- *The dangers of proliferation*: the issue of proliferation and misuse of nuclear technology is always present. Several decades of inspections by the United Nations watch dog, the International Atomic Energy Agency, have proved that only an international control on the whole fuel cycle will enable this major issue to be tackled efficiently.

### *Requirements for the IVth generation of nuclear reactors*

- *Adequate coolant*: the choice of the coolant is central in any nuclear plant design: while it has to be compatible with the neutron economy, it determines the neutronic stability of the core, the thermodynamic efficiency, the loads on the materials, the potential corrosion problems, and the technologies for non-destructive testing. A key aspect is its chemical reactivity, but also the possibility of a phase transformation during its heat extracting function;

- *Structural materials*: fast breeders will require higher operating temperatures and larger irradiation doses. This puts new constraints on the structural materials, and especially on fuel claddings, for which the appropriate choice of materials is not yet obvious. In this context, it is important to combine qualification of potential materials together with fundamental studies on model materials to get a better understanding of the scientific bottlenecks;
- *Actinide management*: The actinides are the most embarrassing waste. Some of them are relatively short lived, but very active (Am 241, Pu 244<sup>1</sup>) and have consequences for storage strategy and for the density of stacking in the disposal site. Some of them (Np 237) have a very long life time, far beyond any engineering project duration, and can be dealt with only, in the absence of present-day transmutation, via long-sighted cooling duration before a deep geological disposal. The technical problems for nuclear waste storage are basically solved by the deep geological storage strategy. The redundancy of the various barriers can still be improved. The main remaining problem is the proof of the very long term **extrapolation** of the safety and security of all the system for the future populations. The potential for transmutations is still a research topic open issue, scientifically developed at the laboratory level and only for sample irradiation for the various actinides (but useful mainly for americium), and it remains to be seen if it is industrially viable in a comprehensive industrial system of operation.

#### *The lessons of the recent crisis*

- *The time schedule*: a specificity of a nuclear system is the wide range of time scales involved, from the time scale of the plant operating to the time scale of waste storage. The time scale of the post accident situation appears here, and also the delay necessary for the reinvestment of the region damaged by the accident;
- *Short and medium term implication*: It is absolutely necessary to maintain a very accurate surveillance, implying the appropriate equipment and well-trained people able to intervene as fast as possible, during the 8 years of construction, the 50 years of exploitation, the 50 years of cooling, and the 50 years of a storage state. It is absolutely crucial to understand than safety in Nuclear energy is a long term commitment;
- *Safety principle: uncoupling the issues*: Resilience of nuclear systems requires one to decouple as far as possible the nuclear issues (such as beta disintegration), the thermo-hydraulic issues (such as heat extraction), and the chemical issues (such as the reactivity of the coolant). It is also crucial to decouple the fission power in reactors from the residual power in stored fuel;
- *Fuel cycle as a central issue*: the fuel cycle appears as the key element in the problem, both for proliferation issues, and for safety issues. Storage has to be well-separated from energy production. Both storage and waste disposal sites will have, sooner or later, to be internationally controlled. The central actor of this cycle is plutonium, either as a waste in the current generation, in the countries which do not reprocess their used fuel elements, or as a fuel in the fast breeders: a “plutonium plan” addressing its specific problems is needed, first in France, then at some convenient international level (it already exists in the United Kingdom).

#### *Recommendations*

The analysis proposed in this article leads to the following recommendations, based upon the current status of scientific and engineering knowledge:

- *There is a need for a continuous watch* over of the complete electronuclear installation (including the reactor and the storage pools). This watch has to be performed by highly competent teams, ready to intervene at any moment, and the program should be operative not only during the operation of the plant, but also after its stopping, and during 50 to 100 years after the end of operation, whatever the reason for stopping the plant;
- *Risk assessment* between two very different concepts is meaningless, but it is reliable in “incremental design”. As such, the EPR, being an evolution of the current PWR, is the best design in terms of safety *available today* in France;
- *A global view is key to provide a sound basis for rational decisions*: in particular, the overall fuel cycle is an issue which has to be decided by the citizen and his elected representatives;
- *Reducing plutonium stocks should be seen as a priority*. Using plutonium in fast breeders is today an attractive solution, since it deals in a coherent way both with the efficient use of resources, and with the management of the back-end of the cycle;
- *Efficiency requires concentration of effort*: the choice made in the 1970s of a single reactor model, a single utility user, a single power plant constructor and a single powerful research lab is to be confirmed as a key asset in the development of the future generation of nuclear reactors.

<sup>1</sup> We must stress that the most radioactive actinide during 80 years after removal from irradiation is plutonium 241, and the second most radioactive actinide is plutonium 238 during the first 20 years after removal from irradiation (Document 58, p. 245 of [1]). It is only after these 80 years of radioactive decay that Am 241 becomes the most radioactive part among the actinides. For the curium 244, the drawback is not heat, but the emission of neutrons by spontaneous fission, and then the necessary radioprotection of workers.

## 1. Introduction générale

### 1.1. Objectifs de cet article

Le développement des activités humaines engendre sans cesse des **faits nouveaux** (dont les émissions de gaz carbonique ou d'autres gaz à effet de serre de toutes natures, ou l'épuisement des ressources énergétiques, de l'eau potable) qui eux-mêmes évoluent aux différents rythmes de ces activités et de leurs conséquences. Les besoins énergétiques sont au cœur de ce développement, la crise climatique au premier rang de ses conséquences.

Ces **faits nouveaux** ont pris corps depuis le début de la crise énergétique, ils viennent s'ajouter au problème du réchauffement climatique et aux inquiétudes légitimes issues de l'accident de Fukushima Dai-Ichi PP (« Power Plant ») et posent question pour la définition du futur « mix » énergétique. Le but de cet article est de présenter les faits physiques, en tenant compte des connaissances actuelles, mais sans recommandation, ni choix, en disant ce qu'on sait et ce qu'on ne sait pas, en se concentrant sur le cas de la France. Les notions scientifiques de base sont exprimées dans un vocabulaire qui est rappelé en Annexe A : éléments de vocabulaire. Les singularités propres au nucléaire sont identifiées. Le cas du cycle du combustible est plus particulièrement étudié ici.

Il est peu de domaines qui mettent en jeu presque tous les aspects des activités techniques humaines comme l'utilisation des énergies qui lient les nucléons dans les noyaux des atomes, récupérées et transformées en une succession d'énergies thermiques de solides, puis de divers fluides, puis de travail au sens thermodynamique, puis d'interactions électromagnétiques, puis de courant électrique, puis de transports, de distribution, d'utilisation, etc.

Ceci amène le public à demander aux spécialistes du nucléaire d'explicitier avec précision les bases scientifiques des réponses possibles. Les protagonistes ont eux mêmes besoin de publications et de références, pour acquérir leur savoir.

Nous nous proposons ici de préciser les limites des **réponses à ces nouvelles questions** que la connaissance scientifique actuelle permet d'esquisser. Il s'agit d'examiner les bases scientifiques de la manière la plus approfondie possible et donc de contribuer à donner des éléments de réponses aux interrogations du public. C'est l'objet de ce texte de lui apporter une argumentation appuyée sur les seuls résultats prouvés expérimentalement.

Ces réponses concernent les domaines suivants :

- les processus propres à la fission nucléaire. Par exemple, nous envisagerons la mise en œuvre des réactions en chaîne (voir la théorie physique, dont celle des absorptions de neutrons dans le chapitre 6, « *Shell structure of nuclei and giant resonances* » de la réf. [2]) d'un empilement de corps fissiles, la concentration de la teneur de ces corps fissiles au sein d'assemblage construits mécaniquement, l'extraction dans un gisement du minerai d'uranium, la séparation chimique des corps radioactifs, etc.);
- les équipements conçus pour mettre en œuvre ces processus, et l'ingénierie nécessaire pour les réaliser ;
- les incidents et accidents qui peuvent leur advenir ;
- l'usage belliqueux qui peut en être fait.

Parmi tous les processus physiques, nous examinerons plus en détail le sort, au cours du temps, des assemblages de combustibles contenant les corps fissiles et leur « cycle de vie », depuis la sortie d'une mine, jusqu'au destin ultime des résidus radioactifs qui en résultent. Cet ensemble constitue le « cycle du combustible ». Il représente une dimension scientifique essentielle parmi les questions plus vastes que nos concitoyens sont en droit de se poser.

Quelques exemples de telles questions peuvent être cités :

- 1 : Peut-on **comparer entre eux les risques** (« risk assessment ») liés aux différentes sources d'énergies, et donc comment se situent, dans cet ensemble, les diverses installations nucléaires, tout au long de leur vie ?
- 2 : Combien **de temps doit durer la surveillance** (« risk management »), avec quels moyens, quels équipements, quelles infrastructures nationales et/ou régionales, et pour quels nouveaux risques (i.e. puissance résiduelle, radioactivité par émission de neutrons, etc.)? Quelle type de « gestion » de ces risques (équivalent du mot « management »), exige la longueur de cette durée ?
- 3 : Comment maîtriser, voire réduire l'usage malveillant des phénomènes nucléaires, comme la **prolifération** (par exemple, par la mise au point de détecteurs<sup>2</sup> de matières nucléaires, faciles à utiliser) ;
- 4 : Quel sens la connaissance des phénomènes physiques et chimiques permet-elle de donner à l'expression « **indépendance énergétique** » ;
- 5 : Comment saisir la diversité des **échelles de temps** des phénomènes, tels que ceux concourant au cycle de combustible ? Ceux-ci vont de la vie moyenne d'un neutron dans la réaction en chaîne, à la demie vie des radionucléides produits par

<sup>2</sup> Des détecteurs de neutrons, ultra sensibles viennent d'être réalisés par le Los Alamos National Laboratory (Super High Efficiency Neutron Counter) et ont été livrés à des utilisateurs. Ces détecteurs de neutrons permettent de détecter les transuraniens par leurs fissions spontanées, donc de trier également, parmi les colis de déchets nucléaires, destinés à être enfouis dans le site de stockage du WIPP (Waste Isolation Pilot Plant), à Carlsbad, aux Etats-Unis, ceux qui contiennent des transuraniens trop abondants.

la fission et par les désintégrations  $\alpha$  des actinides<sup>3</sup> (millisecondes, heures, jours,<sup>4</sup> années, décennies, siècles, dizaines ou centaines de millénaires et même au delà). Ces dernières durées sont hors de portée des observations expérimentales directes, mais elles dépassent aussi de beaucoup les durées habituellement traitées par les **technologies** humaines. Quel sens scientifique cela a-t-il, même si on veut utiliser des analogies avec des phénomènes naturels? Comment réconcilier les échelles humaines des sciences et des techniques et celles des désintégrations radioactives, commandées par les « interactions faibles »<sup>5</sup> et/ou par un processus quantique, donc aléatoire, appelé la « pénétration de barrière ».

Les bases scientifiques des réponses à ces 5 questions varient avec l'avancée des sciences fondamentales concernées. Pour ces cinq questions, ce sont, en particulier, les progrès réalisables en sciences des **matériaux** (leurs tenues *aux irradiations, aux hautes températures, aux fortes contraintes, à l'accumulation de défauts de structure* – fatigue, vieillissement –, etc., à différentes échelles spatiales et temporelles) qui pourront ouvrir des voies nouvelles.

## 1.2. Le contexte du changement climatique

Les questions évoquées ci-dessus deviennent particulièrement importantes dans le contexte du changement climatique. **L'énergie électrique** est nécessaire en France pour les consommateurs, pour les industries, pour les services, pour les transports. Les auteurs de l'article sont convaincus qu'il n'est probablement pas dans les prochaines décades, d'autre ressource primaire de masse démontrée, nationale ou européenne, pour la production d'électricité, que le charbon, le gaz naturel, le pétrole et l'énergie nucléaire, l'hydroélectrique étant saturé en France. La France n'a pas les ressources dans les trois premiers, ni les bénéfices d'une production industrielle et d'une haute productivité pour en acheter sur les marchés internationaux. Il nous semble aussi que, de par leur caractère intermittent et délocalisé, l'éolien comme le solaire satisferont, en priorité les besoins primaires des pays en voie de développement sans pouvoir constituer la source principale de l'énergie électrique mondiale.

La France ne pourra pas **s'adapter aux impacts du changement climatique mondial**, sans des sources d'énergie considérables et bon marché disponibles pour les grandes agglomérations aussi bien que pour les industries et les transports collectifs, etc. et cela dès les prochaines décennies. L'ensemble de réacteurs nucléaires dits de deuxième génération (et troisième durant la décennie qui s'ouvre?) équipant actuellement son parc nucléaire, avec les installations de son cycle de combustibles, et les processus qu'ils permettent de réaliser, en est, actuellement, une composante majeure. Dans ce contexte, il nous semble légitime de s'interroger sur les scénarios possibles pour les prochaines décennies.

L'exemple le plus proche dans le temps de conséquences importantes du changement climatique est le cycle de l'eau. On peut légitimement craindre le manque d'eau douce dans certaines régions de France (et l'excès dans d'autres). Cette situation potentiellement grave peut être palliée ici par des déplacements de l'eau ou de productions agricoles nécessitant de l'eau, ailleurs, par des méthodes d'agriculture et d'élevage, par des usines de désalinisation, etc. Pour ne prendre que la dernière, l'énergie électrique nécessaire est d'environ 2 kWh/m<sup>3</sup> d'eau « désalinisée »<sup>6</sup> produite avec la technologie la plus utilisée actuellement.

Pour toutes ces **adaptations** au changement climatique en France, il faut beaucoup d'énergie. Ne faut-il pas considérer, qu'en matière d'énergie nationale pour produire l'énergie électrique, à bon marché, sans importation de combustible, ni de matières premières, une des sources parmi les plus adaptées à un réseau de transmission et de distribution électrique, et les mieux prouvées<sup>7</sup> des seuls points de vue scientifiques, techniques, industriels et économiques, sera pour le cas de la France, l'énergie nucléaire? Nous allons, dans la présente contribution, en examiner les forces et les faiblesses.

## 2. En France aujourd'hui : quelques questions prioritaires

Nous examinerons successivement des questions qui nous paraissent prioritaires pour le cas français, dans le domaine des déchets et de l'aval du cycle, dans le domaine des matériaux pour réaliser les options de stockage, et enfin dans le domaine de la résilience des systèmes électronucléaires.

### 2.1. Les aspects scientifiques du traitement des déchets radioactifs

L'Annexe A introduit le contexte du cycle du combustible en prenant l'exemple de la France, tant dans le présent, que dans le passé.

<sup>3</sup> On appelle « actinides » la série des corps du tableau de Mendeleïev, allant de l'actinium au lawrencium en passant par le thorium, l'uranium, le neptunium, le plutonium, l'américium, le curium, etc. (« actinos » désigne les rayons en grec).

<sup>4</sup> Parmi les 99 noyaux qui sont les plus abondants des produits de fission directs, soit de masse atomique 62 à 161, il y a en a 52 dont la demi-vie  $\beta$  est inférieure à une heure. C'est pourquoi la variation de la puissance résiduelle est si élevée aussitôt après la sortie du réacteur.

<sup>5</sup> Voir l'Annexe D pour la description des phénomènes de désintégration d'un noyau d'atome.

<sup>6</sup> Voir les détails de cette évaluation dans Menachem Elimelech et al., The future of sea water desalination: Energy, technology and the environment [3].

<sup>7</sup> La production d'énergie électrique par la combustion du charbon, du pétrole, du gaz naturel, etc. est encore plus démontrée. Mais ces sources, dites d'énergie fossile, ont, dans le cas de la France, les handicaps des ressources, donc des prix, du manque d'indépendance qui en résulte et de la contribution aux émissions de gaz à effets de serre.

Les problèmes du nucléaire en France sont-ils **solubles du point de vue scientifique**,<sup>8</sup> **technique, industriel et économique**?<sup>9</sup> Ceux qui restent à préciser compte tenu des délais incompressibles de la radioactivité bêta et alpha et des autres sources de puissances résiduelles qui en découlent, sont, à notre connaissance, les suivantes :

- **L'entreposage** et le **stockage des déchets de haute radioactivité** (en incluant aussi ceux des graphites<sup>10</sup> irradiés et des déchets « tritiés », c'est-à-dire contenant l'isotope de masse atomique 3 de l'hydrogène, en général sous forme d'eau « tritiée »). Un plan de 15 ans est en cours de réalisation, avec des objectifs précis et un calendrier, explicités par une loi du 28 juin 2006, succédant à celle de 1991. Les matières radioactives contenues dans un élément combustible irradié et juste sorti d'un réacteur nucléaire, vont connaître trois étapes de vie :
  - **un refroidissement** en quelques secondes dans une **piscine** d'eau ordinaire, qui en réduit ensuite en 4–5 ans la puissance de 6% à 0,3% de celle dans le réacteur en fonctionnement ;
  - **Un refroidissement** (dans des matrices de verre, à l'usine de La Manche pour ce qui est de la France) dans un fût (« cask ») refroidi, soit par un gaz sec pendant 30 à 40 ans pour un UOX (cas des Etats Unis) ou **60 à 80 ans pour un MOX**,<sup>11</sup> soit dans une piscine souterraine pendant la même durée (cas de la Suède) ;
  - **dans un site souterrain** comme ceux étudiés en Europe, aux Etats Unis, pendant des durées qui se comptent **en siècles, en millénaires**, etc.

Enfin, nous avons **trois échelles de temps** à traiter.<sup>12</sup> La stratégie actuellement retenue en France est la séparation du plutonium et de l'uranium, puis la vitrification des produits de fission et des actinides mineurs (en attendant qu'ils soient éventuellement séparés chimiquement dans le futur). Les verres sont confinés par une barrière dite « géologique », constituée d'une épaisse couche naturelle d'argile. Des options de transmutation de tels ou tels actinides mineurs sont à l'étude. Quelles que soient les options retenues, c'est-à-dire que l'on choisisse ou non de tenter de réaliser la transmutation de certains actinides mineurs (il existe un projet de la Commission Européenne pour diminuer les stocks d'américium et de curium dans une installation nucléaire éventuelle à laquelle nous reviendrons plus loin), la faisabilité scientifique, technique, industrielle et économique du stockage est démontrée par des décennies d'études tant en France que dans le monde entier. Il va de soi que, de plus, il faut sélectionner un site de stockage convenant aux citoyens, tant par sa localisation que par son cahier des charges. Il faut réaliser le site de stockage profond avec toutes les précautions que le génie civil, la mécanique des sols, les manutentions en mines et la compréhension de la circulation des eaux souterraines autorisent, en faisant le plus simple possible compte tenu de ces contraintes, tout en ayant une « stratégie de redondance » pour le choix des différentes barrières, comme cela a été réalisé tant aux Etats-Unis<sup>13</sup> (Waste Isolation Pilot Plant : WIPP à Carlsbad), qu'en Suède (Forsmark et Oskarshamn).

Sur cette question spécifique de l'aval du cycle du combustible, il faut faire en sorte que le **citoyen ait la possibilité de faire un choix**<sup>14</sup> entre plusieurs orientations scientifiques, techniques, de calendrier de rendez vous et de réorientations tant des équipements que des contraintes d'organisation<sup>15</sup> du cycle de combustible<sup>16</sup> (par exemple, tous les cinq ans, comme pour l'Assemblée Nationale). Il importe que cette possibilité de choix n'entraîne pas que l'on repousse le moment de décider des étapes des choix déterminants. Il faut que les décisions soient prises non pas en fonction de progrès hypothétiques à venir (c'est à dire sans l'assurance, au moment d'un choix, de la faisabilité scientifique, tech-

<sup>8</sup> Le lecteur trouvera les justifications dans les publications de l'académie des sciences citées en réfs. [1,4–6].

<sup>9</sup> Le coût (en euro/kWh produit) imputé aux producteurs d'électricité nucléaire en Suède, pour rémunérer les entreprises qui se chargent du destin ultime des déchets nucléaires, vient d'être multiplié par 3.

<sup>10</sup> Aboutir à un stockage définitif des graphites irradiés des anciens réacteurs à graphite gaz de France, du Royaume Uni, d'Espagne, de Russie, etc., dont les impuretés de chlore conduisent à l'isotope 36 du chlore (demi-vie  $\beta : 3 \times 10^5$  ans) est un processus exigeant de hautes températures, dégageant beaucoup d'énergie thermique, exigeant un **grand volume de stockage définitif**, donc difficile, inhospitalier et non résolu, malgré sa radioactivité relativement beaucoup plus petite que celles d'autres déchets nucléaires.

<sup>11</sup> Les éléments combustibles des centrales électronucléaires utilisant des réacteurs à eau, comme les centrales du producteur actuel en France, contiennent de l'uranium enrichi, sous forme chimique d'oxyde, d'où leur nom « Uranium OXyde », soit en raccourci, UOX. Environ le dixième des éléments combustibles ont comme matière fissile du plutonium et de l'uranium, sous forme d'un Mélange d'OXYdes de plutonium et d'oxydes d'uranium. On les appelle « MOX ».

<sup>12</sup> Il est important de remarquer qu'aucune de ces échelles de temps n'est courante en ingénierie (le génie civil faisant peut être exception pour la deuxième échelle de temps), et que l'échelle de temps la plus longue est clairement une spécificité du nucléaire.

<sup>13</sup> Les Etats Unis ont actuellement environ 70 000 tonnes de déchets radioactifs, dont 49 600 tonnes sont encore dans les piscines des centrales électronucléaires, 15 600 tonnes dans des fûts refroidis à l'air et 8000 tonnes de déchets nucléaires provenant principalement de la fabrication des armes nucléaires. Il s'y ajoute chaque année environ 2000 tonnes. **Le rapport des déchets d'origine militaire à celui des déchets civil y est donc de 13 %**. (Jeff Tollefson; Nature news: Battle of Yucca mountain rages on; proposed interim storage unlikely to settle US debate; 17 May 2011). Ce rapport est bien plus petit en France et au Royaume Uni.

<sup>14</sup> Le détail des aspects scientifiques de ces procédés ainsi que des méthodes permettant des choix par les Français (**avec quels critères?** C'est le choix des critères de comparaison qui permet au citoyen de se prononcer) sont exposés dans la réf. [4], troisième partie, chapitre 4.

<sup>15</sup> **Organisation** : L'exemple le plus urgent serait que la durée du séjour d'un élément combustible dans la piscine de refroidissement de la centrale électronucléaire, soit strictement bornée, pour les éléments combustibles usés, tant UOX que pour MOX, chacune de ces durées étant attachée à des phénomènes physico chimiques. Cela suppose de réaliser en France un ou des lieux d'entreposage pour des durées définies (durées qui dépendent tant des propriétés thermodynamiques actuelles de ces éléments combustibles usés que du cahier des charges du site d'accueil futur de chaque catégorie d'élément combustible). L'examen détaillé des causes profondes des **accidents et incidents matériels de toutes natures**, dans toutes les activités humaines de vastes, complexes, hautes technologies, depuis des décennies, effectuée par Charles Perrow, le conduit à constater que **la plupart des graves accidents sont**, en amont, **des fautes d'organisation** [7,8]

<sup>16</sup> Sur la physique du cycle de combustible en France voir la réf. [9]

nique et industrielle des procédés à utiliser), mais en fonction des connaissances techniques existantes, permettant de garantir le réalisme de la solution envisagée.

Pour cela, il faudrait effectuer les recherches permettant d'approfondir le partage des fonctions de sécurité (à court, moyen et long terme) entre la couche géologique, les remplissages artificiels,<sup>17</sup> les matrices d'immobilisations telles que les verres, les bétons, etc. et toutes les catégories de conteneurs qui ont été testées dans le Monde. Car ce **problème est international**, et déjà traité depuis des décennies aux niveaux de l'Union Européenne, de l'OCDE, de l'AIEA, etc. Il est aussi indispensable, compte tenu des délais de manutention, de développer une stratégie de stockage/transport avant enfouissement. Doit-on rassembler les colis à stocker au voisinage du site de stockage, ou au contraire les garder à distance jusqu'au moment final où ils seront stockés? Les conséquences, aussi bien techniques (refroidissement durant le transport), de sûreté, de radioprotection pour le personnel, qu'économiques (multiplicité des sites d'entreposages?) doivent être chiffrées.

- Un autre aspect de l'aval du cycle de combustible est que tous les réacteurs de puissance du monde produisent du **plutonium** à cause de la réaction nucléaire de capture d'un neutron par le noyau de l'uranium 238. Il y a de l'uranium 238 dans tous les réacteurs de puissance opérationnels.<sup>18</sup> Du plutonium 239 est donc produit partout. Certains pays l'extrait dans les usines de séparation chimiques (appelées usines de retraitement) comme celles de La Manche, de Sellafield au Royaume Uni, de Rokkasho Mura au Japon, de Mayak et Krasnoyarsk en Russie, ou le font retraiter dans des usines de retraitement dans un autre pays. Que faire de ce plutonium, soit déjà extrait, soit placé dans des éléments dits MOX (voir la définition dans l'Annexe A), soit pour la grande majorité des réacteurs de ce monde, dilués dans les éléments combustibles UOX déjà irradiés et placés dans les piscines ou dans des fûts d'acier refroidis par air. Le plutonium est-il, pour certains des producteurs d'électricité nucléaire du monde, un élément non souhaité dont ils veulent se débarrasser, soit qu'ils l'utilisent provisoirement comme combustible dans les MOX des REP, soit qu'ils veulent l'éliminer comme déchet? Ainsi, le Royaume Uni possède 112 tonnes de plutonium séparé qu'il veut éliminer dans des réacteurs à neutrons rapides spécialisés pour diminuer autant que faire se peut les synthèses de tous les transuraniens (isotopes du plutonium soit les isotopes 238, 240, 241, 242, 244; neptunium 237; Américium 241, curium 244, etc.) Les études spécialisées du **Royaume Uni** (qui ont développé et publié une stratégie du plutonium – voir la note 23) considèrent qu'avec deux réacteurs à neutrons rapides (RNR) (proposés par l'association d'une compagnie américaine et d'une compagnie japonaise), la durée nécessaire pour détruire tout son plutonium est de l'ordre de 55 ans. Si on considère le plutonium comme un combustible potentiel des RNR en association avec de l'uranium appauvri, ce sont plusieurs centaines d'années de réserves énergétiques qui sont alors envisageables, le plutonium « brûlé » étant régénéré à partir de l'uranium 238. On peut donc soit diminuer la quantité de transuraniens, soit utiliser le plutonium comme combustible renouvelable dans les RNR. Le nouveau point de physique pour diminuer la quantité de transuraniens est d'irradier pendant 90 jours les éléments combustibles contenant le plutonium à détruire au lieu d'une durée actuelle de 3 à 4 ans dans tous les réacteurs de puissance du monde. La raison physique, démontrée par Emilio Segrè dans les années 1940 (voir les détails plus bas, en note 51), est que les nombres de capture d'un neutron par les divers isotopes sont proportionnels à la fluence  $\Phi$  des neutrons (la fluence est le produit du flux<sup>19</sup> de neutrons/cm<sup>2</sup> par la **durée d'irradiation**). Les quantités d'isotopes ainsi formés successivement (240, 241, 242, 244) sont donc proportionnels, respectivement, à,<sup>20</sup>  $\Phi$ ,  $\Phi^2$ ,  $\Phi^3$ ,  $\Phi^4$  et donc aussi à une puissance égale de la durée d'irradiation. **Les rapports des**

<sup>17</sup> Dites aussi « barrières ouvragées ».

<sup>18</sup> Les centres nucléaires de l'Union Indienne mettent depuis longtemps au point le remplacement de l'uranium naturel (donc avec une concentration de 99,28% de l'isotope 238 de cet uranium) par du **thorium**. Le thorium naturel contient 100% de l'isotope 232. La réaction nucléaire de capture, analogue à celle de l'U238, est : thorium 232 + neutron → Th 233 (demi-vie : 36,2 minutes) → protactinium 233 → uranium 233. L'isotope 233 est un excellent combustible de fission, tant pour les réacteurs de puissance à neutrons thermiques que pour les réacteurs à neutrons rapides. Sa demi-vie est de  $1,455 \times 10^{10}$  années. Il est donc un combustible stable. Toutefois, la demi-vie de la désintégration du protactinium 233 dure 27 jours alors que celle du neptunium 239 dure 2,355 jours. Pendant cette durée, le protactinium 233 capture des neutrons et donc diminue la quantité de l'isotope U233, donc le nombre de neutrons disponibles pour une fission de la réaction en chaîne. Parmi les réacteurs de recherche étudiant l'usage de l'isotope 233 de l'uranium (qui n'existe pas à l'état naturel) les seuls autres isotopes naturels sont l'U238, l'U237 et aussi l'isotope 234- de proportion 0,0054% de l'uranium naturel. Un aspect fondamental des études de cœur de réacteur et de cycle de combustible, que ce soit pour les combustibles U235, U238, Pu239, Th232, U233, etc. est de déterminer avec précision, les **sections efficaces** {Unité : 1 barn =  $10^{-24}$  cm<sup>2</sup>} des réactions nucléaires, le nombre de neutrons émis par fission, pour tous les noyaux concernés, à toutes les énergies cinétique des neutrons. Le nom de ce champ de recherche encore ouvert aux progrès des mesures est la détermination des **données nucléaires**. Voir les travaux de Massimo Salvatores et son équipe au CEA/Cadarache [10] ainsi que le cadre international qui est tant l'OECD/Nuclear Energy Agency/NEA/NEA dataBank que l'Union Européenne [105].

<sup>19</sup> Le flux de neutrons par unité de surface à l'intérieur du cœur d'un réacteur est le produit de la densité du nombre de neutrons par unité de volume, multipliée par la vitesse de ces neutrons. La densité est de l'ordre de quelques  $10^8$  neutrons/cm<sup>3</sup>. C'est environ celle du milieu spatial, mais pour celui-ci, il s'agit de molécules. La vitesse des neutrons, dans un réacteur à neutrons thermiques comme les REP, les EPR, les BWR (**B**oiling **W**ater **R**eactor), est d'environ  $4 \times 10^5$  cm/seconde. Dans ces réacteurs, le rapport du nombre de neutrons par cm<sup>3</sup> au nombre d'atomes dans le même volume est de l'ordre de  $5 \times 10^{-15}$ .

<sup>20</sup> La densité de puissance dans un cœur de réacteur est proportionnelle au nombre de fissions du combustible placé dans ce cœur. Celui-ci est aussi proportionnel au flux de neutrons dans ce cœur. Plus généralement, **tous les phénomènes de neutronique, y compris leur variation en fonction du temps sont linéaires par rapport au flux de neutrons dans un cœur**. On peut donc déterminer presque toutes les caractéristiques de la neutronique du cœur, par des expériences à faible puissance, par exemple se comptant en Watt pour la première réaction en chaîne, à l'université de Chicago, par Enrico Fermi, en novembre 1942. Mais puisqu'on peut tout déduire par une règle de trois du flux de neutrons à basse puissance, donc aussi de la densité de puissance thermique du cœur, on peut calculer toutes les répartitions de flux, donc de la densité de puissance. Ensuite, on peut estimer la répartition des températures dans le cœur, en simulant l'apport de puissance thermique par des résistances électriques. En résumé la proportionnalité découple les phénomènes physiques advenant dans le cœur du réacteur. Il est possible d'étudier les phénomènes du cœur, chacun séparément.

**captures successives de neutrons au nombre de fissions dans le cœur du réacteur considéré** conduisant, à partir de l'U238, au plutonium 239,<sup>21</sup> puis aux autres transuraniens de masses isotopiques supérieures. Au fur et à mesure du temps d'irradiation, les transuraniens engendrés ont des masses accumulées de plus en plus relativement élevées.<sup>22</sup> Ces masses croissent plus vite que le flux de neutrons et la fluente (neutrons par cm<sup>2</sup>).

Il est important de noter le potentiel de production d'énergie de l'**uranium appauvri** (en isotope 235), reliquat des opérations d'enrichissement de l'uranium et ne comportant plus que 0,3% d'uranium 235. Il devient un combustible utilisable, pour les centrales électronucléaires de France, si on utilise ses captures de neutrons, conduisant au **plutonium 239**. C'est l'un des objectifs de la Génération IV. Cette ressource potentielle s'ajoute au stock de plutonium existant en France (environ 200 tonnes), lui-même créateur des neutrons nécessaires à la conversion U238 → Pu239. La physique de la réaction en chaîne (voir [2]) consiste à utiliser les stocks et les productions de plutonium comme combustible et à exploiter l'uranium 238, comme matériau fertile **C'est le principe de la surgénération** : Fabriquer plus de plutonium qu'on n'en consomme.

- Etant acquis que le plutonium est un acteur majeur du cycle du combustible, il en résulte la nécessité impérieuse de l'élaboration et de la réalisation en France d'un « **plan isotopes du plutonium** ».<sup>23</sup>

L'analyse du flux de masse concernant le plutonium dans le cycle de combustible en France est rappelé dans l'Encadré 1. Il rappelle qu'**il existe plusieurs options de traitement** du plutonium. L'une d'entre elles est de traiter le plutonium comme une **ressource pour le futur du nucléaire civil**.

#### Encadré 1 : Le plutonium et le cycle du combustible

Il faut distinguer la question du plutonium dans le cycle de combustible lié au parc électronucléaire actuel du producteur d'électricité en France, les éléments combustibles UOX et MOX et la place du plutonium dans le cycle de combustible de la Génération IV.

Récapitulons les étapes de la production, de l'utilisation, de la destruction des isotopes du **plutonium** dans le **cycle des combustibles du parc électronucléaire de France** :

**1** : Dans les 1000 tonnes<sup>24</sup> de combustible d'uranium (on emploie l'expression « par Tonne de Métal Lourd Initial = MTLI » introduits actuellement, **chaque année**, dans les 58 réacteurs du parc nucléaire français, il y a environ 900 tonnes enrichies (à 3,5–4% d'uranium 235) en l'isotope 235, appelés **UOX**, et environ 100 tonnes d'éléments combustibles contenant 6–8% de plutonium (éléments combustibles appelés MOX) extrait des UOX irradiés. Ces 900–1000 tonnes d'UOX irradiés par an contiennent environ 860 tonnes d'uranium 238 (96%) (outre les 36 tonnes de l'isotope 235 de l'uranium : 3,5 à 4%). Ces UOX irradiés, vont donner par capture de neutrons et désintégrations (U238 + neutron → U239 → neptunium 239 → Pu239), environ 12 tonnes/an<sup>25</sup> (soit environ 2 à 3%) de plutonium 239 (et un peu des isotopes 240 et 241 du plutonium). Ce **plutonium** formé in situ dans le réacteur va donner lieu à des fissions et à des captures de neutrons. Ces fissions du Pu détruiront environ 2% du métal lourd. Il resterait dans les UOX irradiés environ 12 tonnes de plutonium, soit 1% de la MTLI (R. Dautray : Les isotopes du plutonium et leurs descendants dans le nucléaire civil, rapport à l'Académie des sciences, mai 2005, TEC DOC

<sup>21</sup> Le rapport de la section efficace de production de neutrons par fission par la section efficace de capture d'un neutron par un noyau de plutonium 238 est d'environ 5 dans un réacteur à eau sous pression. Ce même rapport pour le plutonium 240 est de 0,04, pour le plutonium 241 de 10 et pour le plutonium 242, de 0,06 pour le plutonium 242 – voir pp. 261–271 de la réf. [11]. Nous voyons combien le plutonium extrait d'un réacteur à neutrons thermique est un combustible difficile dans les réacteurs à neutrons thermiques. Ces différences entre les isotopes du plutonium, s'effacent pour les sections efficaces des mêmes isotopes, mais avec des neutrons rapides.

<sup>22</sup> Un exemple de l'application de cette notion, est que les nations qui ont voulu obtenir du plutonium 239, avec le minimum de Pu240, ont irradié très brièvement, leur U238 contenu dans leurs éléments combustibles. De plus, ils ont choisi comme réacteurs, ceux dont l'**économie des neutrons** est la meilleure. L'analyse en est faite dans le paragraphe 2 de l'Annexe A (voir les refs. [12,2]).

<sup>23</sup> Un tel plan existe au Royaume Uni : (National Decommissioning Authority-NDA- : NDA-**plutonium** topic **strategy; credible options and summary**; 30 January 2009). Ce plutonium est placé dans des pastilles de combustible contenant de l'oxyde de plutonium et de l'oxyde d'uranium appauvri, qui est appelé également MOX par les usagers anglophones. Toutefois, la concentration massique en plutonium des MOX destinés aux REP est d'environ 5–6% alors que celle-là est d'environ 20 à 30%.

<sup>24</sup> Voir la justification de ce nombre dans [1], document 17, p. 216 et le texte, pp. 84–86. Rappelons de plus que l'énergie électrique engendrée chaque année par le parc électronucléaire est toujours inférieure à la somme des énergies nominales de chaque réacteur. Il y a toujours des réacteurs, soit qui ne fonctionnent pas à la puissance nominale, faute de demande des usagers, ou des réacteurs arrêtés pour déchargements des combustibles, ou maintenance, ou incidents mineurs, etc. La consommation de combustibles varie donc au cours du temps. De plus, les éléments combustibles sont chargés dans un réacteur pour une durée de 3 ou 4 ans, renouvelables par tiers ou quart de cœur. C'est dire que les nombres comme 1000 tonnes/an, 1200 tonnes/an, 120 tonnes/an, etc. sont des grosses approximations. Plus généralement, le rapport entre la production d'énergie électrique par an et la puissance nominale, appelée facteur de charge, varie dans les centrales du monde entier entre 0,70 et 0,80.

<sup>25</sup> Le stock actuel de plutonium en France est d'environ 200 tonnes. Le stock du Royaume Uni est de 112 tonnes. Parmi les options pour utiliser ce plutonium, l'une d'elles est d'en faire des éléments combustibles à irradier dans un réacteur. Le choix de ce type de réacteur est encore ouvert – RNR ou PWR.

autre manière d'évaluer la masse de plutonium formée dans les réacteurs nucléaires, est de retenir que **la formation d'un gramme de plutonium nécessite de dégager une énergie d'environ 1 MW. jour**. On peut, avec cet ordre de grandeur, passer des **énergies** produites par le nucléaire aux **masses** de plutonium engendrées dans les réacteurs.

**2** : Chaque année, le 1–1,2% de plutonium contenu dans les 900 tonnes d'UOX irradiés, est extrait à l'Usine de La Hague dans le département de La Manche et mis sous forme d'oxyde de plutonium. Il est transporté de l'Usine de La Manche à l'Usine de fabrication des éléments combustibles **MOX** (appelée MELOX) au Centre de Marcoule. Ensuite, ces MOX seront brûlés (= irradiés) dans les réacteurs du parc électronucléaire qui y sont autorisés, actuellement, parmi les plus anciens modèles, ceux de 900 MWé.<sup>26</sup>

**3** : Comment tout cela se résume t-il, du point de vue scientifique ? Tant qu'on irradiera de l'uranium enrichi, contenant encore environ 96% d'uranium 238, cet uranium 238 sera transformé en plutonium 239, avec plus ou moins d'isotopes plus lourds du plutonium. Tant qu'on voudra séparer chimiquement ce plutonium qui constitue environ 1% du « Métal Lourd Initial » – (MLI – introduit initialement dans le réacteur) il faudra fabriquer des MOX et les irradier (l'AIEA s'oppose, en effet, à la constitution de stocks de plutonium pour limiter les dangers de prolifération). Dans le cas contraire il faudra entreposer les UOX irradiés pour les laisser refroidir.

**4** : La fin de ce processus pourra, sur le plan scientifique et technique, intervenir quand les protagonistes des surgénérateurs (c'est à dire, la **Génération IV**) seront à même de réaliser un ensemble de centrales électronucléaires, avec leur cycles de combustibles, les installations nucléaires, les réseaux de manutention, de transport, d'entreposage, de stockages les concernant, ce qui d'après les publications du producteur actuel d'Electricité de France (EDF), s'étalerait de 2060 à 2100. **Plusieurs options sont possibles**, tant dans qu'en dehors de ce scénario. C'est aux Français de choisir les options qu'ils veulent (une liste des pourcentages de puissance dédiée aux EPR (réacteurs à neutrons thermiques, voir Annexe A) et de ce qui serait dédié aux RNR (Réacteurs à neutrons rapides, voir Annexe A), est étudiée, du point de vue de l'économie<sup>27</sup> du nombre des neutrons, dans (R. Dautray : opus cité ; pp. 68–69), et du point de vue industriel [13]. Par exemple, vers 2060, le pourcentage en RNR de la puissance installée est supposé égal à environ 20%.

**5** : Ce seront aux hautes autorités du pays de décider si le producteur d'électricité doit continuer à brûler ces MOX jusqu'à la clôture des centrales électronucléaires et ensuite, dans les EPR qui seront construits. Les MOX permettent de diminuer d'environ 10% la quantité d'uranium enrichi à brûler. De plus le plutonium ainsi dilué dans **un seul MOX** irradié remplace, dans l'entreposage de refroidissement, pour ce qui est du plutonium contenu, **sept éléments combustibles UOX irradiés à placer dans le site de stockage définitif**. Enfin, le plutonium des MOX irradiés contient si peu de l'isotope 239 du Plutonium et tant d'isotopes du Plutonium dégageant de la puissance résiduelle (Pu238 – demie-vie  $\alpha$  : 87,74 ans, Pu241 → américium 241) et des neutrons (Pu240 : demie vie  $\alpha$  = 6563 ans ; demie vie fission spontanée =  $10^4$  fois celle du curium 244) **qu'il est impropre à la fabrication d'explosifs nucléaires**.<sup>28</sup> Ceci a un coût. En irradiant du plutonium avec des neutrons thermiques, on crée de plus en plus de transuraniens (americium, curium, etc.), qui dégagent une puissance résiduelle obligeant le refroidissement à passer d'environ 30 à 40 ans pour les UOX usés à environ 60 à 80 ans pour les MOX usés.<sup>29</sup>

**6** : Toutes ces observations peuvent être faites à leur échelle réelle, c'est-à-dire, celle **d'un seul noyau d'un atome fissile** :

**6-1** : pour un noyau d'uranium 235 placé dans un **UOX**, sa fission produit 180 MeV d'énergie thermique par la dissipation de l'énergie cinétique des fragments de fission dans la pastille d'oxyde d'uranium. Pour obtenir ce neutron, il a fallu 2,5 neutron (le nombre 2,5 est la valeur probable de la variable aléatoire « nombre de neutrons produits par une fission » (note 12 de [5])). Ce nombre se décompose entre les postes suivants : 1 neutron absorbé par fission pour continuer la réaction en chaîne tant dans l'U235, que dans le Pu239 créée in situ et dans l'U238 par les neutrons rapides, 0,2 à 0,3 neutrons pour la capture dans l'uranium 235, 0,2 neutron pour la capture dans l'U238 donnant du plutonium et le reste comme absorptions non fertiles, c'est-à-dire ne conduisant pas à des noyaux fissiles). Pour fabriquer cet uranium enrichi, il a fallu un travail thermodynamique irréversible d'environ 1 MeV/atome d'uranium 235 trié. Pour obtenir cet atome enrichi d'U235, il a fallu entrer dans l'Usine d'enrichissement, 8 atomes d'uranium, soit  $99,3\%/0,720\% = 140$  atomes d'uranium naturel à extraire de la mine. (Les 7 atomes

<sup>26</sup> Seule, la série des REP 900 MWé possède une **économie des neutrons** suffisamment excédentaire par fission pour accepter les combustibles MOX, et encore, pour seulement une portion du cœur de ces **REP 900. L'économie des neutrons des EPR** est beaucoup plus excédentaire. Elle permet d'utiliser le surplus de neutrons par fission pour accepter un chargement complet de MOX. Ce surplus permet aussi d'allonger le taux de combustion des éléments combustibles irradiés.

<sup>27</sup> Voir la notion **d'économie du nombre des neutrons d'une fission**, en Annexe A, §3. **Bilan neutronique**.

<sup>28</sup> Le scientifique le plus élevé du domaine nucléaire au Royaume Uni, Sir David King, a écrit à son gouvernement : « Plutonium is a potential weapons material. Convert it to MOX and use it as a fuel and you have taken it out of this category ».

<sup>29</sup> Cette puissance résiduelle est due à la désintégration du Pu241, du Pu238, de l'américium 241 et du curium 244. Voir le document 25, p. 221 dans [1]. Il faut être conscient que l'irradiation des UOX forme aussi des transuraniens, que ces neutrons les fissionnent et s'y capturent, et de plus y sont dilués. Où est la différence entre la formation et la fission finale pour destruction (après une séparation chimique) des transuraniens issus de l'irradiation des UOX et des MOX ? Une première différence est que dans les UOX, la teneur en plutonium est nulle au départ. Dans les MOX, cette teneur initiale est de 6 à 8%. Une deuxième différence est que dans les MOX, les captures de neutrons se font à partir d'un noyau d'U238 alors que dans les MOX, on part de noyaux Plutonium-américium-curium – qui s'évalent de 239 à 244.

rejetés sont à une teneur en U235 d'environ 0,3% et s'empilent depuis des décennies à la sortie de l'Usine d'enrichissement.) On a donc obtenu une énergie thermique de 180 MeV en consommant environ 300 atomes d'uranium naturel.

L'utilisation du MOX telle que pratiquée dans le parc français permet de gagner 10% sur le nombre d'atomes d'uranium naturel à extraire de la mine pour dégager une énergie thermique de 180 MeV.

**6-2** : Avec un Réacteur à Neutrons Rapides, le calcul des fuites, des pertes de neutrons dans les structures du cœur, dans les transuraniens, dans les séparations chimiques du plutonium, etc. conduit à remplacer le facteur 140 ci-dessus par 60 à 80. On arrive ainsi à dépenser 4,5 atomes d'uranium naturel pour dégager 180 MeV d'énergie thermique dans les matériaux du cœur. (R. Dautray [1] : L'énergie nucléaire civile dans le cadre temporel du changement climatique, encadré III ; Bilans neutroniques ; pp. 75–79 et composition isotopique de ces plutonium, pp. 109–110). **Le parc électronucléaire de France, avec sa capacité de 60 GWé, consomme environ 50–60 tonnes<sup>30</sup> par an de matière fissile initiale. L'uranium appauvri, rejet des Usines d'enrichissement de l'uranium, représente actuellement sur le sol français plus de 200 000 tonnes de matière.<sup>31</sup> Ce stock augmente de 7000 tonnes d'uranium par an. Transformé en plutonium, cela ferait de nombreux siècles de consommation d'énergie par ce cycle de combustible attaché aux RNR surgénérateurs, si des perspectives si lointaines avaient un sens.**

**Résumons cet encadré en quelques mots : il existe plusieurs options de traitement du plutonium. L'une d'entre elle est de traiter ce plutonium comme une ressource pour le futur. La faisabilité scientifique et technique en a été prouvée. Reste à démontrer la faisabilité industrielle et économique.**

Une étape fondamentale de l'irradiation aux neutrons des noyaux de Pu239, est que l'absorption des neutrons par ces noyaux conduit, partiellement à la fission de ce noyau, mais aussi aux simples captures de neutrons par ce même noyau. Cela fait parcourir les masses atomiques 239, à 240, 241, 242, 243, 244 (dits transuraniens) à notre noyau. Un objectif essentiel est de **minimiser le nombre de transuraniens ainsi produits, ramené à une fission (une fois encore, il s'agit de l'économie des neutrons)**. Les degrés de liberté dont on dispose sont la durée d'irradiation en réacteur, le spectre d'énergie des neutrons, la valeur du flux de neutrons. Partant d'une valeur de quelques  $10^{14}$  neutrons/cm<sup>2</sup> environ, comme dans les réacteurs actuels, on pourrait atteindre jusqu'à environ  $10^{16}$  neutrons/cm<sup>2</sup> selon les propositions de C.D. Bowman [104] du Los Alamos National Laboratory [14]. Augmenter les flux de neutrons, c'est aussi, généralement, augmenter la densité de puissance dans le cœur du réacteur, donc les besoins d'évacuation de la chaleur correspondante, les températures des matériaux de structures commandant les limites hautes de ces densités de puissance, et, donc, celles du flux de neutrons.

Nous reverrons ces phénomènes au paragraphe 4.2.

L'extension des options scientifiques et techniques concernant la fin du cycle du combustible en France, si nécessaire pour les choix à effectuer par les citoyens, impliquerait d'ouvrir de nouveaux degrés de libertés dans l'entreposage et le stockage. L'un d'eux pourrait être la reprise de **l'objectif** chiffré et donc de la **conception** des diverses catégories de **conteneurs**, afin qu'ils puissent assurer la totalité de l'étanchéité, en redondance avec la couche géologique et les barrières ouvragées. L'expérience internationale, serait ici indispensable. L'ouverture d'un éventuel deuxième degré de liberté permettrait d'effectuer un bilan des avantages et des inconvénients expérimentaux, dans toutes les mines et ouvrages souterrains, des multiples notions dites de « **réversibilité** » dans le stockage géologique des déchets à haute activité et vie longue (dits HAVL).

## 2.2. Les problèmes liés aux matériaux dans la gestion des déchets

Des problèmes scientifiques et techniques, liés aux **matériaux**, sont encore à l'état de recherches de base dans des pays paraissant les plus avancés dans leurs réalisations, comme la Suède<sup>32</sup> et les Etats-Unis. C'est notamment le cas pour les conteneurs des déchets de haute radioactivité et des trois échelles de durées cités ci-dessus (quelques années, quelques décennies, quelques siècles ou millénaires). Un autre exemple est celui des échangeurs de chaleur avec leurs tensions thermiques et leurs soudures d'assemblages, les équipements de manutention des éléments du cœur, etc. La solution de

<sup>30</sup> Ce nombre est calculé, par plusieurs méthodes, dans [1], pp. 84–86.

<sup>31</sup> Peut-on donner un sens à ce nombre ? Nous verrons, plus loin, que les réactions nucléaires de fission du parc électronucléaire français, consomment annuellement environ 50 à 60 tonnes de matière fissile (R. Dautray, [1], pp. 84–85), de l'uranium 235 principalement et le reste par le plutonium créé in situ par les captures de neutrons par l'U238 (R. Dautray, [1] ; document 123 ; p. 295). Ainsi, avec le stock d'uranium de l'usine Georges Besse, si les surgénérateurs de la quatrième génération le transforment en plutonium, ce qui est l'objectif de la quatrième génération dans l'option choisie par la France, comme la France brûle chaque année environ 50 à 60 tonnes de matière fissile, la France disposera de 200 000 tonnes/60 tonnes de consommation annuelle = 3300 années de réserves. En comptant les diverses pertes, cela ferait un à deux millénaires de matières premières fissiles de combustible pour le parc actuel. Il va de soi que cela n'a pas de sens de parler d'un si lointain futur. Mais on pourrait en dire autant des ressources des autres combustibles énergétiques. On était parti d'un facteur 140, rapport de l'U238 à l'U235, dans le minerai d'uranium naturel. On est passé à un facteur 3300. D'où vient la multiplication faisant passer de 140 à 3300 ? C'est que 140 désigne un rapport de consommation annuelle aussi long qu'on le veut alors que 3300 désigne le rapport d'un stock qui a été formé en 40 ans à une consommation annuelle.

<sup>32</sup> L'organisme suédois responsable du destin ultime des déchets nucléaires est le SKB (Svensk Karnbranslehantering AB). Un site de stockage des éléments combustibles usés est projeté à Forsmark, pour une ouverture en 2020. Le prix de revient est estimé par la SSM (autorité de sûreté des radiations), à 3 millièmes d'euros par kWh, soit 3 fois le coût initial. Il existe déjà sur ce site, un centre de stockage souterrain en exploitation, creusé dans le granit, pour les déchets peu radioactifs.

l'entreprise suédoise SKB, chargée par les producteurs d'électricité, pour le stockage des déchets nucléaires sous forme d'éléments combustibles irradiés,<sup>33</sup> fait reposer le confinement des matières radioactives sur des fûts métalliques (« canister » ou « cask » en langue anglaise). Ceux-ci comportent un revêtement de cuivre pur, résistants à la corrosion. La fermeture de ces fûts en est l'une des étapes les plus délicates. Les fûts sont fermés par une technique de soudage sans fusion comme le FSW (Friction Stir Welding<sup>34</sup>). De plus, ces fûts sont entourés d'une barrière ouvragée favorable parce que simple dans son principe. L'irradiation par le combustible est « écrantée » par un dispositif en fonte. La possibilité de disposer de telles solutions pour les « colis » vitrifiés, contenant ou non du Pu, mériterait d'être explorée, en particulier au vu des dégradations possibles par irradiation. La « solution suédoise » concerne les combustibles directement issus de centrale, non vitrifiés, non retraités. Mais certaines des options retenues dans cette stratégie mériteraient d'être étudiées dans la cadre de la stratégie retenue en France (retraitement et vitrification). Autrement dit, dans une optique de barrière ouvragée, peut-on et alors doit-on découpler les fonctions « d'écrantage de l'irradiation », de « résistance à l'environnement », de confinement des matières ? Un parallèle de la gestion du combustible en centrale et du stockage des déchets est à ce titre éclairant en terme de « stratégie de redondance ». Le fonctionnement des centrales électronucléaires est basée sur une triple barrière pour le combustible (**gaine**, cuve et enceinte), alors que le confinement des actinides est essentiellement géologique et celui des produits de fissions assuré par les verres.<sup>35</sup> Ne serait-il pas envisageable d'avoir une stratégie de redondance avec une double ou triple barrière ? Cela serait favorable au calendrier de la réalisation complète d'une fin de cycle de combustible, car laisser cette option ouverte ne signifierait pas pour autant repousser la réalisation du site de stockage géologique.

### 2.3. L'analyse de la résilience et de la vulnérabilité des systèmes électronucléaires aux dangers potentiels

La question de l'aval du cycle est certes importante, mais aux yeux de nos concitoyens, la question des accidents nucléaires est, à juste titre, aussi préoccupante.

Peut-on préparer la défense contre des accidents nucléaires graves ou des crises, en voulant définir, chiffrer et évaluer des « **probabilités** » d'incidents qu'on cumule par des hypothèse ad hoc, type indépendance,<sup>36</sup> probabilités conditionnelles, « inférences » au sens de la théorie de l'information,<sup>37</sup> etc. ou encore **comparer** des phénomènes, puis des processus complexes comme ceux concourant à la **sûreté** en établissant des **relations d'ordre** entre des événements redoutés<sup>38</sup> sans pouvoir les définir aussi précisément et complètement qu'il serait nécessaire. Ou encore, on s'en tient à expliciter ou à choisir un espace des probabilités adapté aux histoires des événements, à définir sur cet espace une « sigma algèbre » et des applications linéaires continues, du type « mesure d'évènements » comme pour le mouvement brownien ou les processus aléatoires<sup>39</sup> ou encore des procédés analogues aux mesures de Radon, etc. Ou aussi, on définit des espaces mathématiques tellement généraux **qu'on ne peut pas mesurer, ni estimer les constantes physiques les concernant**.<sup>40</sup> La notion la plus féconde ne serait-elle pas de **réduire la vulnérabilité**<sup>41</sup> de tel système<sup>42</sup> nucléaire et **d'augmenter la résilience** du système humain qui l'englobe ? On pourrait, en particulier :

<sup>33</sup> Élément combustibles à base d'uranium enrichi : On dit aussi : « éléments combustibles usés ».

<sup>34</sup> Ces méthodes de fermeture finale et définitive par sertissage des « canister » ou bien « casks » au moyen de **soudage par friction**, permettent d'obtenir une étanchéité, une régularité sans chauffer l'intérieur du « canister » (D. Tscharnkte et al. [15]).

<sup>35</sup> Les actinides sont de gros atomes qui diffusent lentement et sont piégés dans les lamelles de l'argile du site de stockage (en milieu de Ph basique). C'est ce piégeage qui assure la sécurité du stockage pendant les quelques 100 000 ans nécessaires. Les produits de fission sont beaucoup plus mobiles dans l'argile, et en ce qui les concerne le piégeage dans les verres de conditionnement est important, mais ce confinement n'est nécessaire que pour quelques centaines d'années. Le point important est la possible lixiviation des verres en présence d'eau, qui semble être encore retardée par la formation d'un gel protecteur. La doctrine de la « triple barrière » pour le combustible en centrale (gaine/cuve/enceinte de béton) a donc son équivalent pour les déchets en stockage (verre/conteneur/barrière géologique) mais l'efficacité de chaque barrière dépend des éléments à confiner.

<sup>36</sup> L'**indépendance** au sens mathématique, implicite, des « événement », fait qu'on tire de ces probabilités ou de ces processus supposés stochastiques en les multipliant (ce qui suppose l'indépendance des événements) par le nombre des réacteurs et une durée arbitraire de toute la Terre **des valeurs probables** de nombre d'accidents. On raisonne alors sur ces « valeurs dites probables » pour comparer des phénomènes sans analogie.

<sup>37</sup> Voir D.J.C. Mackay : Information theory, inference and learning algorithms [106].

<sup>38</sup> Tous les **grands systèmes complexes de la technologie**, raffineries de pétroles, fabrications d'hydrogène, d'engrais, de grande chimie (Bhopal-1984 ; Seveso-1976 ; Golfe du Mexique-2010 ; AZF, etc.), centrales électriques, réseaux de distribution d'électricité et son contrôle-commande, lanceurs de satellites, moteurs d'avions, trains à grande vitesse, système de pilotage d'un avion, grands tunnels routiers et/ou ferroviaires, etc. **subissent des incidents matériels** (clapet monté à l'envers dans tel lanceur, tube de Pitot devant mesurer la pression, donc la vitesse d'un avion, mais endommagé par un dépôt de glace, etc.) et aussi humains (désaccord sur l'interprétation d'un ensemble d'instruments de mesures, etc.) de toutes natures. Par exemple, tel fabricant des plus grands moteurs d'avions de ligne du monde, détecte en direct tel incident sur un moteur en vol, avertit tous les moteurs de sa fabrication en train de voler, ainsi que tous ceux qui ont le même équipement, pour vérifier de leur côté, si le même incident est présent. Toutes les équipes sur tous les aéroports attendant ces avions, se préparent à la révision de composants soupçonnés, et remettent ces moteurs en état de ne plus avoir d'incidents. Toutefois, certains exploitants de grands équipements mécanique-électrique-électronique-etc. n'acceptent pas de développer les procédés aboutissant à ces procédés d'organisation, qui entraînent des contraintes.

<sup>39</sup> Voir [16–18].

<sup>40</sup> Voir p. 77 de R. Daustray [19] : Sécurité et utilisation hostile du nucléaire civil ; De la physique à la biologie.

<sup>41</sup> C. Perrow [8], chapitre 5 : Are terrorists as dangerous as management? The nuclear plant threat ; pp. 134–173. Dans les opus cités de l'un des auteurs du présent texte sur le nucléaire, on s'interroge toujours sur la raison pour laquelle certains protagonistes du nucléaire, s'expriment toujours sur ce qui va se passer dans 100 000 ans et pas sur ce qui suit immédiatement la sortie de réacteur de combustibles irradiés et leur devenir pendant les premières années d'entreposage en piscine.

<sup>42</sup> Réduire la vulnérabilité d'un système vaste, stockant de l'énergie, de la puissance, des détriments, etc., de haute technologie, implique d'en diminuer, autant que faire se peut, la complexité des interactions des éléments internes du système considéré et d'en éliminer les couplages forts.

- 1 : Éliminer les interactions plus ou moins étroites, plus ou moins intenses entre ses composants (par exemple, le réacteur dans son enceinte de confinement et le contenu en éléments combustibles usés de la piscine<sup>43</sup> de refroidissement<sup>44</sup>), etc. car nous reverrons plus bas dans ce paragraphe 2.4 et dans l'encadré 5 du paragraphe 5.3, l'analyse de cette disposition essentielle des bâtiments d'une centrale électro-nucléaire et des enceintes de confinement devant contenir **tous les matériaux radioactifs en cas d'accident nucléaire**.
- 2 : Elargir l'examen des incidents matériels et de leurs arbres de défaillance. De nouveau, on trouve une relation d'ordre,<sup>45</sup> mais fournissant des garanties plus étendues, car sans disposer des notions et donc des théorèmes du calcul des probabilités (R. Kalman [20]).

Autrement dit n'est-il pas plus convenable, au lieu de multiplier des probabilités définies de façon plus ou moins arbitraires, de procéder selon la stratégie du « Fail Safe » couramment appliquée en aéronautique où la conception est telle que la ruine d'un composant n'entraîne pas, par « effet domino », la « ruine »<sup>46</sup> du système ?

Une des priorités pour diminuer la vulnérabilité potentielle des installations nucléaires, en particulier celles du cycle de combustible, pourrait être de rendre beaucoup plus simple ce système électronucléaire. Constatons qu'il est de plus en plus compliqué à mesure que l'on veut prendre en compte la résilience à de nouvelles catégories d'incidents et d'accidents. Revenons à l'exemple de la fonction **d'entreposage d'éléments combustibles usés dans une piscine pour refroidissement**, notamment les **MOX**. Actuellement, environ 100 à 120 tonnes de MOX irradiés/an (ce sont des tonnes de métal lourd initial), s'ajoutent chaque année au stock de MOX irradiés existant. Il est envisagé par le producteur d'électricité de les retraiter tôt ou tard, et d'en extraire en particulier le plutonium d'une part, l'uranium de l'autre et aussi les produits de fission. Le destin futur des transuraniens,<sup>47</sup> actuellement – c'est-à-dire pour les UOX irradiés – mélangés aux produits de fission – reste à préciser suivant les options décidées par les Français. Il en est de même pour les **UOX non retraités**.<sup>48</sup> Ceux-ci devraient-ils, dès que possible du point de vue des manutentions et transports, être totalement séparés, physiquement et géographiquement du réacteur nucléaire et de ses sources froides ? C'est ce que font les Suédois, avec une piscine souterraine regroupant tous les éléments combustibles de leur pays pour leur refroidissement pendant 30 à 40 ans.<sup>49</sup>

Tout ceci, appliqué au cas de la France, conduirait à envisager par les Français les options relatives à **deux opérations nouvelles, distinctes, dans l'aval du cycle de combustibles** :

- 1 : Placer les éléments combustibles irradiés, après leur déchargement, dans une piscine située sur le site de la centrale électronucléaire, proche du réacteur, mais assez séparée pour qu'un accident sur le réacteur n'entraîne pas de conséquences sur la piscine de refroidissement et vice versa. Encore faudrait-il **construire toutes ces piscines, avec toute la manutention nécessaires et les enceintes de sécurités distinctes ?**
- 2 : Dès que la diminution de puissance résiduelle le permettrait (ce qui se compte en années – voir l'Encadré 2), il serait souhaitable qu'une deuxième opération puisse avoir lieu, **transporter ces éléments combustibles dans une nouvelle installation (à réaliser), consacrée à l'entreposage** pendant trois à huit décennies, (suivant qu'il s'agit de d'assemblages UOX ou MOX irradiés).

<sup>43</sup> Ces piscines de refroidissement des éléments combustibles irradiés doivent comporter une épaisseur d'eau d'environ 12 mètres (ou plus) au dessus du sommet des éléments combustibles pour protéger le personnel. Les éléments doivent depuis le début de leur sortie du réacteur jusqu'à leur rangement dans la piscine, toujours rester dans un canal d'eau.

<sup>44</sup> Ces deux sous-ensembles d'une installation nucléaire sont séparés par des centaines de kilomètres en Suède. L'ancien « Secretary for Science » (à partir de l'accord du Sénat américain en 2006) auprès du Secrétaire à l'énergie des Etats Unis, Raymond L. Orbach, ancien Chancelier de l'université de Californie, un des meilleurs physiciens américains, voyait récemment dans le long entreposage d'éléments combustibles usés dans la piscine numéro 4, une des sources de la dimension exceptionnelle de la crise de Fukushima. Il rappelait les publications du Department of Energy : actuellement, il y a 60 000 tonnes de combustibles (en matière lourde contenue), dont 40 000 tonnes en piscine de refroidissement (« Fuel stored in cooling pools ») et 20 000 tonnes déjà placées dans des fûts secs refroidis avec une circulation de gaz (« Fuel stored in dry casks »). Les opérations sont lancées pour qu'en 2030, la moitié de l'entreposage d'alors (total = 110 000 tonnes de combustibles), soit à cette époque dans les fûts secs, soit 55 000 tonnes, et le reste encore dans les piscines. Vers les années 2055–2060, l'entreposage dans les piscines serait suffisamment court, pour réduire à très peu son tonnage.

<sup>45</sup> Même une relation d'ordre local, par exemple entre des réacteurs à eau sous pression de structures générales analogues, mais de dates de construction différentes ou seulement de fabrication différentes (par exemple, les soudures du générateur de vapeur, ou bien pour le dernier PWR, l'accrochage des supports internes du réacteur, agrippés à la cuve du réacteur) n'a pas un sens qui permette d'assurer, dans l'absolu, un niveau de sûreté. Toutefois, ce qui est utile, c'est de construire des **arbres des défaillances** et de leurs conséquences donc d'histoires, (car ils se déroulent dans le temps) des multiples événements entraînés par ces éventuels incidents. (Cela est effectué systématiquement en France, avec rigueur. Toutefois, ce n'est pas fait dans beaucoup de nations.) On peut alors tenter de les comparer qualitativement entre eux, ou de distinguer les causes, les interactions, les couplages forts. Ainsi, une fuite de radioactivité dans le bâtiment du réacteur, peut empêcher de traiter les problèmes de puissance résiduelle dans une piscine de refroidissement des éléments combustibles.

<sup>46</sup> « Ruine » est le mot technique de la mécanique des milieux continus, désignant la destruction d'un système mécanique.

<sup>47</sup> Les transuraniens produits dans les réacteurs nucléaires et dont la demi-vie est suffisamment longue pour qu'ils jouent un rôle dans le cycle des combustibles sont notamment : les isotopes 238, 239, 240, 241, 242 du plutonium, l'isotope 237 du neptunium, les isotopes 241 et 242 de l'américium, l'isotope 244 du curium. Pour les séparer, divers procédés chimiques et physico chimiques en ont montré la faisabilité scientifique au CEA et technique à AREVA. R. Guillaumont : Update on the chemical thermo dynamics of uranium, neptunium, plutonium, americium and technetium, [21].

<sup>48</sup> Actuellement, tous ces éléments combustibles irradiés, tant UOX que MOX et les combustibles MOX pas encore irradiés, contiennent, en France, environ 300 tonnes de plutonium, dilué dans les matrices d'oxyde d'uranium. Les transuraniens sont répartis entre les verres entreposés à l'usine de retraitement de La Manche, où ils refroidissent, les UOX irradiés non retraités et les MOX irradiés. La masse cumulée de ces transuraniens est actuellement d'environ 20 tonnes (en gros, moins d'un dixième de la masse cumulée de plutonium).

<sup>49</sup> Voir « Nuclear plants could be made marginally less complex if the spent storage pool was removed from the premises » dans C. Perrow [7,8].

Enfin, il faut aussi que les Français choisissent entre les options de **protection de ces déchets nucléaires** :

- 1 : Les laisser tels quels (c'est-à-dire **nus**), dans des piscines ou des entreposages à refroidissement gazeux (cas des verres placés dans des enveloppes métalliques); ou bien
- 2 : placer les MOX irradiés et les UOX non retraités, après le refroidissement initial de quelques années, groupés, dans des **fûts (« canister ») refroidis par des gaz** (solution des Producteurs des Etats Unis), où il resteront pendant toutes les manutentions, les transports, l'enfouissement dans un site souterrain géologique.

Il faut être conscient que ces deux catégories d'opérations, déchargement du combustible et protection des déchets, s'imposent à toutes les nations qui comme nos voisins européens, doivent arrêter des installations électronucléaires, qu'elles soient en fin de vie technique, ou non rentables ou ne satisfaisant pas aux évolutions des critères de sécurité, ou simplement arrêtées pour des raisons de choix politique, etc. Toutefois, un choix parmi les orientations à long terme de production d'énergie nucléaire est encore possible, voir nécessaire. A long terme, le producteur d'électricité peut craindre une pénurie d'uranium naturel issu des gisements miniers. Une nouvelle approche scientifique et technologique est alors loisible pour ce producteur d'électronucléaire : passer aux surgénérateurs, quand ils seront mis au point par les laboratoires concernés. C'est l'un des objectifs du présent document que de scruter la faisabilité scientifique et technique de cette orientation.

#### Encadré 2 : La puissance résiduelle des éléments combustibles

La **puissance résiduelle des éléments combustibles** d'un réacteur après arrêt de sa « criticalité » n'est pas du tout négligeable. Pour un réacteur à eau sous pression dont tous les éléments combustibles sont des UOX, elle s'élève à 7% de la puissance de fonctionnement dès l'arrêt. Cette puissance résiduelle tombe progressivement à 0,5% au bout d'un jour d'arrêt du réacteur et au bout d'un an à environ **0,2 %** de la puissance de fonctionnement.<sup>50</sup> Cette puissance résiduelle atteint un peu moins qu'une dizaine de Mégawatts thermiques dans les centrales électronucléaires actuelles. Ceci suffit pour endommager, voire fondre localement les **gainés** des éléments combustibles. Ce danger est dissipé quand la diminution graduelle du nombre des noyaux radioactifs contenus dans les éléments combustibles fait que la puissance résiduelle est égale à celle évacuée **naturellement** par la **source froide**. Cette chaleur résiduelle évacuable par conduction naturelle est d'environ **0,8 kW thermique** pour un assemblage combustible UOX irradié à 33 GW.jour/tonne (respectivement : 1 kW pour un UOX irradié à 43,5 GW.j/tonne; rappel : la masse d'un élément de réacteur de 900 MW électrique est de 649 kg) pour une **durée de refroidissement** d'environ **5 ans**.<sup>51</sup> (La puissance thermique d'un seul élément combustible MOX, irradié à 43,5 MW jour/tonne de métal lourd initial, serait alors d'environ 2800 W; voir la figure du document 25 de [1], et la Fig. 6 de [13].) **Les nucléides responsables de la puissance résiduelle de l'élément UOX au bout de 5 ans, sont alors, pour plus de la moitié de la puissance résiduelle, le praséodyme Pr144 et son prédécesseur, le cérium 144** (dont la désintégration  $\beta$ , avec une demi-vie de 284,8 jours, donne naissance au Pr144).

Après un refroidissement de **30 ans**, c'est-à-dire quand il sera possible de placer les éléments combustibles UOX des REP (Réacteurs à eau sous pression, voir Annexe A) dans un site géologique définitif, les responsables de la puissance résiduelle (tombée à environ 200–300 W par élément combustible, soit environ 0,4 kW/tonne mli) seront **l'yttrium 90** à 47%, le baryum 137 à 33%, le césium 137 (demi vie  $\beta$  : 30,07 ans) à 10% et le strontium 90 (demi vie  $\beta$  : 28,79 ans) à 9%. Un calcul analogue pourrait être effectué pour les verres contenant les produits de fission. Mais, il faudrait y ajouter la puissance résiduelle des actinides dites mineures.

Pour un élément combustible **MOX**, irradié au taux standard de 40–45 GW.jour/tonne de métal lourd initial, la puissance résiduelle sera longtemps (à cause des demi vie des désintégrations du plutonium 241, de l'américium 241 et des curium 242 et 244) environ au bout de 2 ans (respectivement 30 ans, 80 ans) trois fois (respectivement 5 fois, 10 fois) plus élevée que pour un élément combustible UOX irradié au taux standard de 33 GW.jour/tonne de métal lourd initial. Pour atteindre ces **1000 Watt**, il faut une durée de refroidissement en piscine ou en conteneur

<sup>50</sup> Un repère pratique : La radioactivité d'un réacteur nucléaire de puissance, par exemple de 1 GigaWatt électrique en fonctionnement et donc au moment de son arrêt, est de l'ordre de  $2 \times 10^{18}$  becquerels (un becquerel est égal à une désintégration de noyau d'atome par seconde. Un curie vaut  $3,7 \times 10^{10}$  Becquerel. C'est la radioactivité émise par un gramme de radium 226). N'oublions pas que plus un produit de fission a une demi-vie courte, plus il est radioactif. Cette radioactivité de  $10^{18}$  becquerels est donc dominée, tant dans le réacteur en fonctionnement nominal qu'au moment de son arrêt et pendant quelques instants ensuite, par ces radionucléides, à demi-vie courte. C'est pour cela que la puissance résiduelle tombe très rapidement après l'arrêt d'un réacteur. Ainsi, à Fukushima Dai Ichi, on est tombé à 1% de la puissance nominale en moins de 5 heures après l'arrêt des réacteurs et à moins de 0,2%, au bout d'une année après l'arrêt du 11 mars 2011. Disons de manière simple (en ignorant les taux de formation et les énergies cinétiques des électrons et rayons gamma prompts émis par chaque produit de fission) que au bout d'un arrêt de  $N$  secondes du réacteur, c'est le produit de fission dont la demi-vie est d'environ  $N$  secondes qui domine la radioactivité, et donc aussi la puissance résiduelle, et ceci depuis l'instant  $N/2$  jusqu'à l'instant  $2N$ .

<sup>51</sup> Au bout d'environ 1 an, la puissance résiduelle est tombée à environ 0,2%, ce qui permet de placer les éléments combustibles dans un fût en acier, à sec, mais refroidi par un gaz, soit pour le transporter à un site d'entreposage (cas des Etats Unis, depuis 1986, par exemple, en Virginie), soit pour le transporter à une usine de retraitement (cas de la France pour la plupart des UOX usés).

refroidi par un gaz d'environ **80 ans** (R. Dautray [1], document 25, p. 221) à cause de l'américium 241 et du curium 244.<sup>52</sup> Ajoutons que la **puissance résiduelle d'un réacteur arrêté est due aux désintégrations  $\beta$  et  $\alpha$** . Elle ne provient donc pas de l'énergie cinétique des fragments de fission.

Au contraire, dans un réacteur nucléaire en fonctionnement, **l'énergie thermique provient principalement des fissions**. C'est donc la durée **entre la naissance d'un neutron** et sa disparition qui est la **constante de temps caractérisant des phénomènes de variation de la puissance**, (notamment en cas d'accident de réactivité, comme à la centrale de Tchernobyl). Pendant cette durée, le neutron né d'une fission subit environ 15 chocs dans l'eau. Ces chocs sont des diffusions, élastiques ou non. La durée totale de vie de notre neutron avant son absorption par un noyau ou sa fuite hors du cœur du réacteur est alors d'environ 15 microsecondes. C'est la constante de temps commandant les variations de puissance d'un réacteur nucléaire, avec les neutrons dits « Prompts »<sup>53</sup> (voir le sens des neutrons de fission prompts comparés à ceux qu'on appelle retardés dans [22,5] et la note 12, troisième ligne, de bas de p. 653 de [6]).

**En quelques mots, la puissance résiduelle des éléments combustibles est une contrainte essentielle des durées de refroidissement, de lavage, de manutention, de transport, qui commande tous les calendriers du traitement des assemblages du cycle de combustibles et la vulnérabilité des installations nucléaires. La maîtrise demande plusieurs défenses en profondeur, redondantes et indépendantes.**

Quelques bilans des dernières décennies devraient maintenant être effectués :

- Quel rôle a joué l'existence du **retraitement des combustibles usés**, de leur manutention, transport, entreposage, sûreté, sécurité et quels sont les résultats d'une éventuelle analyse avantages/inconvénients ? Quel rôle a joué le fait que les éléments usés de la centrale électronucléaire de Fukushima<sup>54</sup> étaient restés en piscine (voir l'Encadré 3) en attente d'envoi en usine de retraitement ?
- Un grand nombre de réacteurs de centrales électronucléaires a été arrêté en fin d'exploitation, dans le monde entier, en général après plusieurs (en général trois à quatre) décennies d'exploitation sans problème. Cette expérience accumulée considérable permet de considérer qu'il faudra environ une décennie pour aboutir à des cahiers des charges réalistes concernant l'arrêt et le démantèlement<sup>55</sup> des centrales électronucléaires, pour les fabrications en grandes séries des outils indispensables, avec une volonté nationale vigilante et soutenue. Au Royaume Uni et aux Etats Unis, on a conduit une vingtaine de campagnes annuelles de démantèlement. Il faut compter environ une trentaine d'années pour démanteler une centrale, sans compter bien évidemment la gestion des éléments combustibles et de quelques matériaux de structures devenus fortement radioactifs (nickel 63 de demi vie égale à 100 ans, nickel 59, cobalt 60 de demi vie égale à 5,2 années, etc.). Ces matériaux de structure ont une radioactivité d'environ le millième des éléments combustibles usés après leur refroidissement de 5 ans, de l'ensemble des colis de déchets, des déchets vitrifiés, etc. (R. Dautray [1], document 6, pp. 205–206, 15–16, pp. 212–215, document 37–38, pp. 225–226).
- Beaucoup des facteurs principaux, qui deviennent sources d'accident, ne relèvent pas d'instances juridiques, mais de la vie quotidienne. Un de ces facteurs est **l'organisation** et/ou les priorités budgétaires (par exemple, le nettoyage des déchets radioactifs de Marcoule, le traitement de l'eau « tritiée » des réacteurs de recherche, les déchets tritiés du centre de Saclay/CEA, la durée du séjour en piscine, les échangeurs de chaleur de PHENIX, le budget de maintenance d'EDF pour la distribution, le destin des graphites irradiés des anciennes centrales à Graphite/gaz (appelées MAGNOX<sup>56</sup> et AGR<sup>57</sup> au Royaume Unis, UNGG-Uranium Naturel Graphite Gaz, etc., en France, etc.). Quel est le rôle de la minimisation des dépenses qui incite à étaler les délais de traitement des décontaminations pour les anciennes installations ?

<sup>52</sup> On a vu que l'américium 241 de demi-vie de 459 années provient de la désintégration  $\beta$  du plutonium 241 (14,35 années). Le curium 244 (demi-vie 18,10 années), provient tant des captures successives de neutrons sur les noyaux de curium 242, curium 243 que des captures de neutrons sur l'américium. Pour une capture de neutron, la quantité de corps formée est proportionnelle à la fluence de neutrons reçue par le nucléide. Pour deux captures (cas du Plutonium 240, déjà signalé par Emilio Segré en 1943 (E. Segré : « A mind always in motion », autobiography ; Chapter 7 ; University of California Press ; 1993), c'est le produit des deux fluences qui commande le nombre de radionucléides formés ; pour trois captures de neutrons successives, ce sera le produit de 3 fluences qui déterminera la teneur en transuraniens, etc. (L. Hoddeson et al. : Critical assembly ; a technical history of Los Alamos during 1943–1945 ; Chapter 12: the discovery of spontaneous fission in plutonium and the reorganization of Los Alamos ; Cambridge University Press, 1993). Donc, la formation des noyaux transuraniens n'est plus linéaire en fonction du nombre des captures successives. C'est ce qui contribue, avec les fissions spontanées des isotopes pairs (plutonium 240, curium 244, etc.) croissant en  $Z^2$ , à l'importance des américium et des curium dans la puissance résiduelle.

<sup>53</sup> Dans ce cas on parle de criticité « prompte ». Dans un fonctionnement normal la constante de temps commandant les variations de puissance du réacteur est dominée par les constantes de temps des neutrons retardés et atteint plusieurs millisecondes.

<sup>54</sup> Les réacteurs de cette centrale sont du type General Electric Mark 1 et ont été en service depuis les années 1970. Il existe 32 réacteurs de puissance de ce type en exploitation dans l'Union Européenne dont 6 en Allemagne (sur 17), 3 en Suède (sur 7), 2 en Suisse (sur 5).

<sup>55</sup> Le démantèlement des centrales électronucléaires nécessite la connaissance scientifique et technologique de 7 domaines d'activité : (1) Inventaire détaillé de la radioactivité de la centrale et de son site ; (2) Méthodes de décontamination ; (3) Méthodes de découpages de toutes les structures, équipement, de la centrale ; (4) Opérations à distance et robotique ; (5) Gestion scientifique et technique des déchets radioactifs ; (6) Santé des travailleurs ; (7) Sûreté et sécurité. Le critère de choix des méthodes et des équipements et des métiers concernés est de minimiser les risques radioactifs des travailleurs et d'optimiser tant la durée, le calendrier, les risques humains, et le coût.

<sup>56</sup> Ce nom provient de la nature de la gaine métallique entourant les combustibles sous forme d'un barreau d'uranium naturel métallique : MAGnésium avec 0,6% de zirconium.

<sup>57</sup> L'uranium de ces combustibles est enrichi en l'isotope U235, ce qui permet d'utiliser des gaines en acier inoxydable, de l'uranium sous forme d'oxyde  $UO_2$ , et le combustible sous forme de crayons.

### Encadré 3 : Piscines de manutention et de refroidissement des éléments combustibles et centrales électronucléaires

Un principe de sécurité simple est qu'on ne devrait pas laisser stationner ensemble, donc au risque d'un couplage fort, des équipements du système de la centrale électronucléaire qu'un accident sur l'un de ces équipements provoquerait éventuellement chez un autre. Un exemple serait que dès que possible, les éléments combustibles irradiés refroidissant dans les piscines des centrales électronucléaires, et les matériaux radioactifs posant problème (par exemple, pour la Grand Bretagne, le graphite irradié – contenant l'isotope 36 du Chlore – des centrales dites MAGNOX – Magnésium Graphite Nuclear OXide – et de celles dites AGR – Advanced Graphite Reactor), soient évacués vers un entreposage plus éloigné de la centrale (c'est le cas des centrales électronucléaires de la Suède, où un seul lieu d'entreposage – deux piscines voisines souterraines, creusées dans le granit – de refroidissement pendant 30 à 40 ans, est occupé par tous les éléments combustibles du pays). Pour cela il faut pouvoir manipuler et transporter les éléments combustibles irradiés. (Par exemple, au bout de trente ans de refroidissement, 47% de la puissance résiduelle – soit environ 1000 Watts pour un UOX 2 irradié à 43,5 GWjour/tonne de métal lourd initial et refroidi 30 ans – provient de la désintégration  $\beta$  de l'Yttrium 90, 32% du baryum 137, 10% du césium 137 et 8% du strontium 90 (R. Daustray : [1] document 25 ; p. 221). Si on veut placer ces éléments combustibles dans un « cercueil » (« cask » = « fût » en anglais) refroidi pour ce faire, il faut d'abord les laver. Pour cela, la puissance résiduelle de ces éléments doit être inférieure à un niveau fixé par le type de processus de lavage et les normes de radioprotection, par exemple, à 7,5 kW/élément combustible dans le cas étudié par EDF pour les réacteurs à neutrons rapides dans la réf. [13] (p. 216, Fig. 6 et texte) et de l'ordre de 1 kW pour les éléments combustibles UOX des REP (dans le cas d'assemblage à différents% d'U235 et à des taux de combustion de 33 GWjour/tonne de métal lourd initial) de taux de combustion (R. Daustray [1], document 25, p. 221). Les durées de refroidissement correspondantes sont d'environ 5 ans. On a vu en l'Encadré 1 que le nucléide responsable de cette puissance résiduelle est alors, pour près de la moitié de la puissance résiduelle, le Praséodyme Pr144 (demi-vie  $\beta$  : 17,4 minutes, mais issu du cérium 144 de demi-vie  $\beta$  285 jours).

En résumé, la **réponse la plus simple aux risques accumulés par les diverses parties du cycle de combustibles** : séjour en réacteur, manutention de sortie du réacteur, refroidissement initial, refroidissement en années, puis en décennies, etc. est de **séparer ces divers processus**. Sinon, on s'embarque dans des réponses technologies de plus en plus compliquées, créatrices de nouveaux risques.

### 3. La France, l'Europe et le monde dans un avenir plus lointain : les conséquences du contexte économique sur les problèmes scientifiques et techniques

#### 3.1. L'indépendance énergétique de la France et sa défense

Il est important de mener cette réflexion dans le souci de l'indépendance de la France qui est une condition nécessaire de sa capacité de décision. Cette indépendance, qui n'est bien évidemment pas une tentation à l'autoconsommation et une autosuffisance générale, se décline à la fois du point de vue de l'énergie, et du point de vue de la défense.

- Constatons que, dans ce bilan, l'énergie nucléaire a assuré **l'indépendance énergétique de la France**, tant pour son électricité, ses chemins de fer, ses industries, que pour son agriculture (en particulier dans l'électrification des dispositifs et les réorganisations industrielles qui en sont résulté). La France n'a plus de charbon, plus de gaz naturel, pas de pétrole, plus d'hydraulique à aménager. Pourtant, on peut espérer que dans la décennie qui s'ouvre, les voitures électriques, construites, en particulier, par les deux groupes industriels français, nous donneront l'indépendance des transports individuels. Le rôle de l'électricité est aussi crucial pour les transports en commun<sup>58</sup> probablement appelés à se développer. L'énergie nucléaire peut fournir l'électricité nécessaire. Nous n'avons pas de ressource minérale économiquement rentable en uranium, mais les réserves en uranium appauvri, associées au plutonium produit dans le parc actuel, et dans une stratégie de développement de la filière à neutrons rapides<sup>59</sup> (un réacteur dit de « Génération IV »,<sup>60</sup> objet du chapitre 4 de cet article) assurerait notre indépendance énergétique totale.
- Il est enfin impossible de maintenir une **Défense nucléaire de la France** (donc, contribuant à la Défense de l'Union Européenne, quels que soit les objectifs nationaux), ni de **participer à la lutte contre la prolifération**,<sup>61</sup> sans maîtriser

<sup>58</sup> Des autocars à pile ont été réalisés et exploités au Canada.

<sup>59</sup> La preuve découle de deux nombres : les **200 000 tonnes d'uranium appauvri**, rejets de l'usine de séparation des isotopes de l'uranium, entreposés et située à l'usine Georges Besse, une fois transformée en plutonium par les surgénérateurs, et compte tenu des pertes, fourniraient environ de **150 000 tonnes de plutonium fissile**. Le parc électronucléaire de la France **consomme annuellement de 55 à 60 tonnes de matières fissiles** [1]. Le stock existant sur le territoire actuel de la France, et le taux de consommation, permettraient des millénaires de consommation énergétiques.

<sup>60</sup> Le vocabulaire correspondant est exposé en Annexe A.

<sup>61</sup> Pour une mise à jour récente – le 12 octobre 2011, et notamment « Chapter 4: The proliferation resistance of spent fuel management », voir (Fuel cycle stewardship in a nuclear renaissance: The Royal Society, October 2011; 86 pages).

et pour cela, exploiter, toutes les technologies concernant les divers types<sup>62</sup> de cycle du combustible et les sources de neutrons. Cela est nécessaire tant pour la production des matières<sup>63</sup> que pour les études de vieillissement des matériaux des engins nucléaires et de la dispersion des produits radioactifs. Des exemples<sup>64</sup> en sont l'approvisionnement en tritium, en eau lourde et les sources puissantes de neutrons.<sup>65</sup> Disposer de toutes les technologies du cycle de combustible concerne non seulement toutes les installations<sup>66</sup> du parc électronucléaire<sup>67</sup> de la France, mais aussi tous les procédés physiques, chimiques, mathématiques, mécaniques, de radioprotection, etc.

### 3.2. L'Europe et le monde, des besoins énergétiques différenciés

Les pays exploitant ou voulant exploiter l'énergie nucléaire, diffèrent dans leur population, leurs besoins énergétiques, leurs expériences des technologies complexes et la sûreté nucléaire de ces installations projetées ou existantes. Cela conditionne les choix qu'ils peuvent faire

Pour avoir une vision comparative adéquate des situations dans les différents pays du globe, on doit distinguer à la fois les conditions de population, les besoins individuels par habitant, et les besoins pour :

- le développement industriel et/ou agricole ; ou pour
- les structures collectives (comme les usines de désalinisation).

Il faut aussi avoir en tête les échelles de temps : les pays émergents se développent en ce moment, à l'échelle de la décennie. C'est donc à court terme qu'il faut répondre à leurs besoins, avec des solutions qui soient les moins dommageables possibles dans la perspective du changement climatique mondial.

La situation énergétique est différente suivant que l'on a affaire :

- à des populations rurales de faible densité, pour lesquelles les besoins énergétiques sont relativement faibles et individualisés ;
- aux mégapoles du tiers monde où les densités de population sont réelles, mais limitées par la surface au sol (ce qui conduit à des zones urbaines très étendues) : les besoins énergétiques sont à la fois individuels (chauffage, éclairage, sanitaire, cuisson ...) mais peuvent aussi être collectifs (désalinisation de l'eau) ;

<sup>62</sup> Parmi ces divers types de cycle de combustible, citons celui bâti sur la production des plutonium par des réacteurs à graphite (Corée du Nord), à eau lourde (Union Indienne), sur la séparation isotopique de l'uranium 235 par centrifugation (Pakistan, Iran, Russie), l'enrichissement par diffusion gazeuse (USA), l'irradiation du thorium pour former de l'uranium 233 (Union Indienne) le procédé chimique de séparation des isotopes mis au point par le CEA, et peut être bientôt, la séparation isotopique d'un actinide par un procédé laser.

<sup>63</sup> C'est ce qu'ont compris les grandes puissances d'aujourd'hui et de demain : Etats-Unis, Chine, Royaume Uni, Union Indienne, Russie. C'est ce que visent des pays émergents, candidats au nucléaire civil, dont ceux qui sont nos voisins autour de l'ère Méditerranéenne et au delà de la frontière Est de l'Union Européenne. (Ajoutons que l'Union Indienne a produit le plutonium de ses premières bombes nucléaires en l'extrayant du combustible irradié dans le réacteur qu'elle avait acheté au Canada, comme source d'électricité, dans le cadre du traité de l'ONU (« Peaceful Nuclear Activities »), opération légale, réglementaire, de l'AIEA. L'eau lourde nécessaire a été fournie, toujours dans ce même cadre légal, par les Etats Unis (U.S. Nuclear Non-Proliferation Act of 1978 Section 104d).

<sup>64</sup> Un autre exemple en est la dernière proposition du « U.K. proposes Fourth Carbon Budget (www.dece.gov.uk) » qui propose l'objectif de diminuer les émissions de carbone de 1990 à 2025 par 50% afin de parvenir en 2050 à une diminution de 80%. La répartition des sources d'électricité visée serait de 40% produit par l'électronucléaire, 15% par les énergies renouvelables (vent et océans), 40% provenant du charbon et du gaz naturel avec capture et entreposage du gaz carbonique et le reste de sources diverses. Le rapport détaillé est sorti en octobre 2011.

<sup>65</sup> Notamment les réacteurs CANDU (CANada Deuterium Uranium) : Canada, Corée du sud, Union Indienne, Chine, etc. Il faut souligner que tous les réacteurs à **eau lourde** du monde entier (donc aussi les CANDU) produisent du tritium (isotope de masse atomique 3, de l'hydrogène) en masse, par la réaction nucléaire deutérium + neutrons → tritium (demi-vie  $\beta = 12,323$  années). Pour la protection du personnel, et quel que soit l'usage visé civil ou militaire (le tritium est un corps indispensable pour bâtir des engins thermonucléaires), ils doivent le séparer de l'eau lourde. Pour ce faire, ils utilisent des installations mettant en œuvre des procédés physico-chimiques de « détritiation » pour récupérer ce tritium. Ce tritium s'est rapidement changé, par réaction chimique en eau dite « tritiée ». Ainsi, le Canada est aujourd'hui le plus grand producteur de tritium du monde. Il apporte ce tritium comme sa quote-part dans l'entreprise ITER qui a pour objectif d'obtenir une réaction thermonucléaire de fusion entre le tritium et le deutérium. En Europe, après l'arrêt du réacteur de puissance de Brennilis, refroidi et modéré à l'eau lourde les seuls réacteurs à eau lourde en fonctionnement, sont aujourd'hui des réacteurs d'expérimentation physique, qui ne disposent plus d'une installation de « détritiation ». Dans les usines de séparation chimiques des éléments combustibles irradiés, les fissions « ternaires » (en trois produits de fission, dont quelquefois, du tritium) sont une très petite proportion (moins du dix-millième) des fissions. Toutefois, le grand flux massique des fissions fait que ce processus rare donne une proportion notable de tritium. Celui-ci, par réaction chimique, devient rapidement de l'eau tritiée, laquelle est rejetée tant en mer que dans l'atmosphère, où elle est diluée rapidement. Il en était de même pour l'usine de retraitement de Sellafield, en Angleterre et va l'être, dès la mise en service de l'usine de séparation chimique de Rokkashomura, au Japon.

<sup>66</sup> Par exemple, le programme actuel de développement du parc électronucléaire de la Chine comporte : (1) Une capacité électronucléaire de 80 GWé (GWélectrique) en 2020, de 200 GWé en 2030, de 400 GWé en 2050 (World Nuclear Association ; www.world-nuclear.org ; 2011) ; et (2) la réalisation de prototype de nouvelles filières d'installations nucléaires, dont les RNR. (Parmi ses installations et ses procédés nucléaires, la Chine déclare disposer des **équipements de retraitement** (opus cité ; 2011) et d'en faire usage pour ses combustibles usés dans le cadre du développement cité ci-dessus). Ces poursuites et développements des productions d'électricité d'origine nucléaire ont également lieu dans les autres pays du BRIC, dans la Corée, etc. Les modifications de sources nucléaires en Europe n'ont pas pour le moment de conséquences sur le futur à l'échelle du monde entier, de l'énergie nucléaire.

<sup>67</sup> Le parc électronucléaire Français contient 58 REP – Réacteurs à Eau Pressurisée, pour une puissance installée de 63 GWélectrique. Leur durée de vie actuelle, fixée à 30 ans, est envisagée de passer à 40 ans. Sur ces 58 réacteurs, les plus anciens ont une capacité électrique 900 MWé. Parmi ceux-ci, une vingtaine ont l'autorisation de recevoir des éléments combustibles MOX. Le schéma du cycle de ces combustibles est donné dans (R. Dautray [1] ; document 17 : les flux dans le cycle du combustible nucléaire, p. 216). A titre d'exemple, rappelons que le Japon dispose de 54 réacteurs nucléaires de puissance, l'Allemagne de 17, le Royaume Uni d'un seul PWR (REP situé à Sizewell-B), la Suède de 7, la Suisse de 5, les Etats-Unis de 104.

- aux populations urbaines des villes des pays développées, fortes consommatrices d'énergie, densément peuplées et avec des banlieues résidentielles. Les besoins sont à la fois individuels et collectifs.

### 3.3. Les solutions pour les populations dispersés et les besoins individuels

Au niveau d'un habitat dispersé, alors que les apports de l'éolien sont intrinsèquement limités, les travaux actuels sur la photosynthèse artificielle couplant cellules photovoltaïques et catalyseurs organométalliques ou métalliques pour électrolyser l'eau, viseront à stocker les produits de l'électrolyse, et les recombinaient dans une pile à combustible, avec une insistance forte sur des cellules peu chères plutôt que des cellules performantes. Ces travaux ouvrent des possibilités réalistes pour le photovoltaïque « individuel » qui pourrait être accessible aux pays en voie de développement. Ce n'est pas encore du domaine de la grande fabrication, incluant distribution, maintenance et valeur commerciale. Toutefois, ce n'est pas hors d'atteinte dans la décennie à venir. Notons que cette stratégie scientifique, déjà en cours, est un véritable changement par rapport à des décennies de recherche de performance accrue des cellules (pour répondre aux besoins de puissance [23, 24]) : on ne cherche plus à produire vite, mais plutôt à produire longtemps, en stockant, et à un coût abordable. L'exigence scientifique sur les **matériaux** devient alors non pas d'améliorer le rendement photovoltaïque, mais d'améliorer l'efficacité des catalyseurs, de développer des moyens de stockage de l'hydrogène et de l'oxygène, et de disposer de piles à combustibles efficaces [25,26]. Notons aussi que cette stratégie, essentiellement pensée pour des besoins localisés et individualisés, évite le problème délicat du transport de l'hydrogène, consommé sur le lieu de sa production. Notons enfin que dans les besoins des pays émergents, si cette solution est potentiellement envisageable pour les besoins individuels, elle reste inopérante pour produire les puissances nécessaires à des grands ensembles industriels, ou a des besoins collectifs.

### 3.4. Les solutions pour les populations concentrées et les besoins industriels

La situation est fondamentalement différente dans les pays développés à fortes concentrations urbaines, et aux besoins industriels importants, pour lesquels la production centralisée d'électricité reste primordiale. Le développement du nucléaire civil en France doit tenir compte de l'évolution du nucléaire dans l'ensemble du monde. Avec les technologies poussées actuellement, elle ne semble pouvoir être satisfaite, pour la consommation jusqu'à la fin du siècle, que par le passage à la quatrième génération du nucléaire.

Les nouvelles ressources en énergie actuellement développées dans l'éolien et le solaire pourraient, suivant les lieux d'implantation, dans les régions à haute densité de population, se heurter à des problèmes de place en surface de sol occupé par *kW de capacité électrique maximale installée*, de stockage et de prix pour les pays développés à concentrations urbaines importantes. La demande mondiale sera accélérée dès les deux prochaines décennies de ce siècle, par la croissance démographique et la dimension internationale des connaissances comme des activités. Cette demande d'énergie électrique ne semble pouvoir être satisfaite, (avec les technologies prouvées actuellement, dans la perspective de servir les consommateurs jusqu'à la fin du présent siècle), que par le recours à l'énergie nucléaire, avec la perspective d'un futur passage progressif, pour une partie<sup>68</sup> de la production d'énergie électrique nucléaire, au cours de la deuxième moitié du siècle, à la quatrième génération du nucléaire.<sup>69</sup> Sinon le charbon et le gaz resteront les principaux contributeurs à la production d'électricité avec les conséquences environnementales que l'on connaît, Les projets de production massive d'énergie solaire dans des zones désertiques avec transport vers les zones urbaines et industrielles des pays occidentaux sont pour le moins problématiques en ce qui concerne les déperditions au cours du transport. Depuis plusieurs décennies, c'est l'aspect « ressources minières et gisements d'énergie fossile » à long terme qui a été la raison invoquée pour les études de surgénérateurs<sup>70</sup> [22]. L'extension des travaux sur cette quatrième génération peut conduire à des améliorations techniques, tant pour les centrales électronucléaires<sup>71</sup> qui les utilisent que pour les cycles de combustibles qui leur sont associés. La comparaison de leur sûreté avec celle de la génération III de réacteurs est à approfondir par l'expérience. Nous y reviendrons plus loin.

<sup>68</sup> Ce partage de la production électro nucléaire entre plusieurs filières (ici Génération II, Génération III, Génération IV) est expliqué dans un scénario de développement de l'énergie électrique en France, entre 2030 et 2100, dans la réf. [27], à la Fig. 5, p. 215 et les options de caractéristiques des cycles de combustibles envisageables, à la Fig. 7, p. 217.

<sup>69</sup> Ce développement de l'électronucléaire, avec une perspective à long terme vers les surgénérateurs (4<sup>ème</sup> génération), est l'option retenue actuellement, par la Chine, L'Union Indienne, la Corée du Sud, la Russie, etc.

<sup>70</sup> Définis en Annexe A, ils sont une des options possible de la « Génération IV ».

<sup>71</sup> Des exemples de scénarios de déploiements de ces technologies de surgénération, pour la France sont donnés par N. Camarcat et al. [13], en particulier la figure 1. Ces auteurs envisagent un premier prototype industriel (caractérisé pour l'exploitant par un niveau de puissance électrique de l'ordre de 1 GWé) de surgénérateur commençant à produire vers 2040, arrivant à une puissance totale déployée par un parc de Génération IV de 15 à 20 GWé, vers 2050 jusqu'à 2080 et recommençant à croître à partir de cette date vers un pourcentage de la puissance en France plus élevé. Le détail des fabrications de combustibles, des séparations mécaniques, donné en figures 3 et 4, p. 214 et figure 7, p. 217, de la réf. [13], conduirait à exploiter encore vers 2060–2070, une puissance installée en EPR de 40 GWé (dans l'hypothèse d'une proportion de MOX analogue à celle actuelle, ces 40 GWé constituant la moitié du parc électronucléaire de cette époque (rappel : 2060–2070). Il va de soi que de tels scénarios sont des exercices sur les possibles techniques, avec les seules informations scientifiques dont on dispose actuellement. Ils sont à mettre à jour constamment.

## 4. Les spécificités du nucléaire et les exigences de la génération IV,<sup>72</sup> le cas particulier des RNR refroidis au sodium

### 4.1. Les technologies de la fission nucléaire

Les réussites techniques et industrielles du nucléaire, sont liées aux concepts **de réaction en chaîne de fission** (la fission est découverte à la fin de l'année 1938, le nombre de neutrons par fission est mesuré en début 1939; la faisabilité scientifique de la réaction en chaîne de fission est établie expérimentalement en novembre 1942 dans un sous-sol sportif du stade de l'Université de Chicago, avec une puissance totale de l'ordre du Watt<sup>73</sup>). Les progrès des réacteurs électrogènes depuis ne sont-ils pas aussi le fruit de la technologie des **chaudières à eau** et de leurs circuits, entre source chaude et sources froides, (pompes, vannes, aciers, soudures, commande-contrôle-sécurité de la pression, mécanique des milieux continus, étanchéités, condenseurs, thermodynamique, etc.)? C'est sur cette technologie qu'a pu se développer l'industrie électronucléaire, qui a permis de passer d'un objet de laboratoire à un produit industriel. Au delà des spécificités propres à l'irradiation qui sont dominantes pour les composants proches du cœur, les requêtes technologiques sur des circuits, sur les échangeurs, sur les turbines, en terme de tenue à chaud, de résistance à l'environnement, de tenue à la fatigue, de nécessité d'assemblages et de mise en œuvre, sont des questions génériques de tous les dispositifs produisant de l'énergie par voie thermique.

### 4.2. Les exigences de la Génération IV

Pour que la technologie de production d'énergie électrique par voie nucléaire soit pérenne à l'échelle des siècles, il faudra passer à ce que des spécialistes nomment « la **quatrième génération** », dont les réacteurs dits « surgénérateurs » sont un exemple. L'uranium, actuellement connu par la prospection géologique, n'est pas inépuisable. L'estimation des réserves est toujours problématique compte tenu de l'interaction entre le pur problème de prospection géologique et d'exploitation minière, et les aspects économiques de la question. Mais il faut, pour que cette technologie nucléaire soit pérenne à l'échelle des siècles, repenser dans son ensemble le cycle du combustible. Cette nouvelle génération de réacteurs devra présenter une sûreté accrue, une bonne radioprotection du personnel, une plus grande durabilité, une meilleure utilisation du combustible.<sup>74</sup> Elle devra répondre à des conditions de non prolifération. Enfin, le tout devra être économiquement viable. Les six concepts de réacteurs retenus par le panel international « **GEN IV** » correspondent à des choix possibles, les ordres de priorité relevant de la spécificité du pays concerné. Comme nous l'avons déjà signalé, la France ne dispose que de peu de ressources minérales en uranium, mais elle a, de par son histoire, plus de 200 000 tonnes d'uranium appauvri en isotope 235, entreposé près des usines d'enrichissement de l'uranium en isotope 235. Il serait utile que la France fasse le choix de continuer le développement des **réacteurs surgénérateurs** à neutrons rapides. Ceux-ci ont le triple avantage de pouvoir utiliser ce combustible appauvri, d'utiliser le Pu produit par les centrales électronucléaires à eau comme les REP actuels du parc français, d'offrir un cycle fermé qui pourrait être avantageux pour l'économie des neutrons, et pour la diminution de production des déchets.<sup>75</sup>

Les obstacles rencontrés pour le développement de cette nouvelle génération (**GEN IV**), en particulier en termes de résilience accrue, sont scientifiques et techniques : [27–30,5,6]. Nous allons examiner successivement le fluide caloporteur, les matériaux, et le sort des transuraniens.

#### 4.2.1. Le fluide caloporteur

- Pour les projets de GEN IV, il pourrait être utile de rechercher une solution de fluide de refroidissement plus sûre<sup>76</sup> que les pratiques actuelles. Il faut souligner ici l'importance des **changements de phase** éventuels des fluides caloporteurs

<sup>72</sup> Génération IV : Voir l'Encadré 2, et l'Annexe A.

<sup>73</sup> Le phénomène de la **fusion thermonucléaire** en régime stationnaire a été proposée au milieu des années trente, sa **faisabilité scientifique** n'est toujours pas établie en 2011. C'est montrer l'ampleur des difficultés scientifiques et techniques à surmonter.

<sup>74</sup> Ainsi le rapport des captures fertiles aux fissions du plutonium 239 dans un cœur de RNR est de **1,1** alors que le rapport des captures fertiles dans l'U238 aux fissions d'U235, d'U238, du plutonium 239 créés in situ est d'environ **0,65** dans un cœur de REP (documents 122 et 123 des pp. 294–295 [1]). Dans un cœur de REP, ces captures fertiles produisent du Pu239, lequel est détruit par fission in situ. Il en résulte que près du tiers des fissions dans un REP, proviennent du Pu239).

<sup>75</sup> La cause de ces avantages en matière de production de déchets par unité d'énergie électrique produite, tient à deux phénomènes physiques. Le premier est que le rapport de la section efficace de capture d'un neutron par les actinides sur la section efficace de fission de l'actinide considéré est beaucoup plus petit pour les neutrons de forte énergie cinétique (environ 0,6 MeV) que pour les neutrons thermiques (environ 1/40 d'eV) des réacteurs à eau. La deuxième cause est la plus haute température du fluide de refroidissement sodium par rapport à l'eau, ce qui permet d'augmenter la température d'admission de la vapeur d'eau à l'entrée des turbines, faisant passer leur rendement thermodynamique d'environ 34 % à environ 42 %, ou plus. Concevoir des installations productrices d'énergie, ou bien des moteurs, ou bien des transports, etc., c'est actuellement, chasser des %.

<sup>76</sup> Quand on examine les causes fondamentales des crises du nucléaire, on parvient dans beaucoup de cas, à un défaut de refroidissement, lui-même dû à un **changement de phase** du fluide de refroidissement. Parmi les autres fluides que l'eau, signalons outre le sodium liquide, le plomb, et des gaz comme le CO<sub>2</sub> ou l'hélium. Dans le cadre GIV, on doit aussi signaler les réacteurs au thorium [29,30]. Ceux-ci utilisent comme matériau fertile le **thorium** et comme matériau fissile, l'isotope 233 de l'uranium (demi-vie  $\alpha = 1,59 \times 10^5$  ans), issu de la réaction : thorium 232 + neutron = Th233 → Pa233 (demi-vie  $\beta : 27$  jours) → U233.

et des réactions chimiques avec déflagration et possibilité de détonation.<sup>77</sup> Cette question du fluide caloporteur se décline en deux cahiers des charges, au moins dans la logique de séparer le circuit qui extrait la chaleur du cœur, du circuit qui fournit aux turbines le gaz qui les fera tourner. Le fluide caloporteur du cœur doit répondre à des conditions d'économie de neutrons (tant pour les REP [11] que pour les RNR [12]) et de tenue en température [5] des matériaux qui doivent avoir des propriétés neutroniques convenables. Le fluide du second circuit, qui aboutit à la source froide, relève, lui, de requêtes essentiellement thermodynamiques. Les questions de compatibilité entre ces deux fluides (par exemple sodium et eau) posent elles aussi des problèmes technologiques<sup>78</sup> qui peuvent conduire, soit à prévoir un circuit intermédiaire<sup>79</sup> (au risque de perte de rendement), soit à gérer comme des incidents possibles à détecter le plus rapidement possible les risques de contacts induits par le percement des échangeurs de chaleur. De plus, les manutentions dans des corps comme le sodium,<sup>80</sup> le plomb fondu ou en alliage eutectique, etc. sont malaisées. Elles ont déjà posé de sérieux embarras aux exploitants des installations nucléaires les utilisant. Ces fluides inusuels posent aussi des problèmes dans la maintenance des centrales électronucléaires, avec les difficultés associées au contrôle non destructif (par ultrasons par exemple).

#### 4.2.2. Les matériaux

Les fortes contraintes des conditions thermodynamiques, physiques, chimiques, mécaniques, etc. liées aux réacteurs de GEN IV (autrement dit, en ce qui concerne non seulement la France, mais la plupart des pays industriels, **les réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides (RNR)** imposent de développer des **matériaux** conservant leurs performances à **haute irradiation et hautes températures**. Les recherches seraient particulièrement nécessaires si l'on voulait augmenter la température dans le cœur d'un RNR, afin de modifier le concept de RNR, en étudiant un autre fluide de refroidissement.<sup>81</sup>

Les matériaux [33–35] utilisés pour SUPERPHENIX et pour les réparations de PHENIX étaient de l'acier inoxydable 316L(N), tant pour les **cuves**, les pompes, les échangeurs de chaleur du circuit primaire, les structures internes, les tuyauteries, les vannes, les purgeurs, les appareils de manutentions. Il faut tirer les enseignements des graves incidents matériels du premier barillet (de SUPERPHENIX) lors de la manutention des éléments combustibles venant d'être irradiés afin de les transporter dans des piscines de sodium pour un premier refroidissement. Ces problèmes étaient dus à un mauvais choix de l'acier inoxydable du barillet, dans un souci d'économie mal placé. Il faut de plus réaliser qu'il est nécessaire de passer des températures actuelles du point chaud de la surface de la gaine du combustible du cœur d'environ 350 °C dans les REP à environ **500–550–600 °C (source chaude)**. Cette élévation de température permettra de passer d'un rendement thermodynamique de la turbine à vapeur d'environ 32–34% (**source froide** – condenseur à environ 25 °C) à plus de 40–45%. Mais elle impose des exigences accrues sur les matériaux. Tous les composants, déjà irradiés, devront être démontés et analysés au laboratoire chaud de métallographie. Il faudra y estimer, par l'observation fine, les contraintes résiduelles et les mécanismes de vieillissement aux températures les plus élevées comme à celles plus répandues dans les divers composants des circuits de refroidissement et de pression. Le fond des difficultés tient à l'aspect fondamental des phénomènes, et à la difficulté de décrire des phénomènes aussi complexes que les effets de l'irradiation sur des propriétés comme le fluage, la résilience ou la corrosion sous contrainte, par une connaissance approfondie des conséquences microstructurales de l'irradiation.

Dans le cadre d'un réacteur ayant le sodium liquide comme fluide caloporteur, la cuve n'étant pas sous pression et le fluide étant relativement peu agressif chimiquement vis-à-vis des matériaux métalliques des circuits de refroidissement, le choix des matériaux pour la cuve et la circuiterie n'est pas un problème majeur.<sup>82</sup> Les problèmes de fatigue, de tenue au vieillissement des soudures ne sont pas spécifiques au nucléaire, et relèvent de la recherche technologique incrémentale, qui doit être effectuée, mais qui ne comporte pas de verrou scientifique bloquant. On peut même envisager, compte tenu de la faible agressivité chimique du fluide, de remplacer les alliages à base de nickel par des alliages Fe–Cr.

<sup>77</sup> Il s'agit d'une détonation au sens de propagation d'une onde de pression avec les conditions de Rankine-Hugoniot mais beaucoup plus faible, en pression et en vitesse (un facteur 10 au moins) qu'avec des molécules d'explosif. Cf. [31] Chéret, Delpuech, Michaud : la détonation des explosifs condensés ; collection CEA, série scientifique ; Masson, tomes 1 et 2.

<sup>78</sup> Pour étudier expérimentalement, à des échelles adéquates, les circuits de sodium, et leurs compatibilités avec une source de chaleur (que sont les surfaces des éléments combustibles du cœur et les structures internes de ces cœurs, soutenant ces éléments combustibles d'un RNR) et les sources froides des tuyauteries contenant les fluides (eau) des condenseurs, de telles boucles de sodium ont été construites et exploitées aux Etats Unis, au Royaume Uni, en France, en Union Indienne, en Allemagne, en Chine, en Union Soviétique et maintenant en Russie, etc.

<sup>79</sup> La plupart des incidents sur les RNR concernent les échangeurs de chaleur (circuits intermédiaires entre le réacteur et la vapeur d'alimentation de la turbine) et notamment les matériaux, dont les soudures.

<sup>80</sup> Les chargements et déchargements des éléments combustibles se sont faits, dans tous les réacteurs en exploitation du monde, réacteur arrêté, le sodium étant chauffé (pour rester liquide) au dessus d'environ 180 °C : la température de fusion, à la pression atmosphérique, est de 97,80 °C (883 °C pour l'ébullition). Toutefois, les possibilités de bouchages des circuits (par des paquets d'impuretés) obligent à hausser la température du sodium au delà de la température de fusion). Les conditions sont les mêmes pour toutes les manutentions d'éléments combustibles de RNR refroidis par le sodium, y compris pendant le refroidissement de ces éléments combustibles, leur nettoyage avant transport, etc. Après une décroissance suffisante de la puissance résiduelle (fixée à 7,5 kW) de ces combustibles, ils sont donc lavés, et pour ce faire, installés dans des loges remplies d'azote. Après un nettoyage rigoureux, ces assemblages combustibles, peuvent être placés, pour refroidissement long, dans des piscines d'eau. La durée du refroidissement des combustibles avant lavage, dépend fortement de la teneur en transuraniens des combustibles usés. Ajoutons que les propriétés thermodynamiques du sodium liquide permettent d'évacuer la puissance résiduelle d'un RNR arrêté, rien que par sa convection naturelle. Cela a été vérifié par les exploitants de PHENIX et ceux de SUPERPHENIX.

<sup>81</sup> Cette étude est prévue dans le programme international de GEN IV, voir J. Bouchard [32].

<sup>82</sup> Sous réserve qu'n ne fasse pas un choix de matériau « à l'économie », comme cela avait été le cas pour le barillet de Superphénix pour lequel un acier inoxydable « bas de gamme » avait été imprudemment préféré dans une tentative maladroite de diminution des coûts.

Par contre, la **gaine** du combustible est un composant essentiel qui est à la fois soumis à l'irradiation,<sup>83</sup> à la température,<sup>84</sup> à la pression interne des gaz de fission,<sup>85</sup> et que l'on ne peut pas tant « sur-dimensionner » ; il faut choisir la nature des matériaux car ceux-ci doivent rester suffisamment transparents aux neutrons. Ces matériaux, dans un RNR, subiraient des dommages d'irradiation aux environs de 100 à 150 dpa (dpa : « Déplacement par atome »<sup>86</sup>) avec des températures autour de 500–585 °C pour les réacteurs refroidis au sodium (ce qui autoriserait les aciers ferritiques/martensitiques [37–47], peut être les alliages au Vanadium [48,49] et les « Oxyde Dispersed Steel-ODS Steel » [50–64]. La recherche de nuances d'aciers ferrito-martensitiques présentant des compositions à faible activation nucléaire, a amené au cours de la dernière décennie de très nombreuses études concernant leur tenue à chaud, leur ténacité, la stabilité thermique et mécanique des microstructures, leur comportement en présence d'hélium et sous irradiation. Les aciers ferrito-martensitiques ou martensitiques sont connus pour une bonne tenue au gonflement, lequel est créé par les produits de fission gazeux, ceux qui donnent des composés volatils, l'hélium des désintégrations  $\alpha$  des actinides, etc. L'emploi des aciers renforcés par une dispersion d'oxydes nano structurés (les ODS) pourrait faire gagner une centaine de degrés C sur la limite de température au point chaud des structures.<sup>87</sup> Elle permettrait d'éviter le recours à de nouveaux matériaux comme les composites fibreux de Carbures de Silicium qui sont assez problématiques en terme de tolérance au dommage [65].) Les renforts par des oxydes nano structurés et dispersés ont pour fonction d'améliorer leur tenue au fluage. Ces matériaux posent à la fois des questions de technologie (fabrication contrôlée avec maîtrise des paramètres des procédés de déformation et de recuit sur l'état du renfort et sur la structure granulaire plus ou moins fibrée, soudage par des méthodes de friction malaxage, ...), et des questions de science fondamentale qui demandent des études dédiées.

Ainsi, les alliages Fe–Cr demandent eux même à être étudiés avec un souci de compréhension des mécanismes. La forte irradiation de ces matériaux, avec une tendance à la décomposition spinodale dans les Fe–Cr présente un risque de fragilisation qui doit être examiné aussi bien du point de vue expérimental que du point de vue théorique (par exemple, par des simulations de type « Monte Carlo cinétique »). Développer des calculs de structure électronique pour guider une procédure « d'alloy design » pour contrecarrer cette tendance à la décomposition serait grandement bienvenu. Enfin, les matériaux en questions seront fortement irradiés à hautes températures. La question du comportement sous irradiation à ces **doses de rayonnement reçu** et à ces **températures** est encore largement ouverte. Ceci concerne aussi bien :

- le point de vue de la genèse des amas de défauts et des dislocations qui en résultent ;
- le point de vue de la destruction possible des structures de dislocations (dislocations libres et sous joints de grains) issues des procédés de mise en forme ;
- le point de vue des phénomènes de ségrégation induite par irradiation.

On pourrait se contenter de « qualifier » des matériaux existants comme le pratiquent tous les bureaux d'études de construction mécanique. Toutefois, compte tenu des sollicitations locales ou temporelles, la prudence recommande de développer une connaissance approfondie. Ceci nécessite de se donner les moyens de le faire par des études sur des matériaux modèles dédiés. Citons le fluage sous irradiation, le gonflement, la ségrégation induite, la stabilité des structures de dislocations sous irradiation. Ce sont autant de questions qui doivent être examinées si l'on souhaite maîtriser la **durabilité des gaines de combustibles** des RNR de la GEN IV.

La présence de dispersions d'oxyde (les ODS cités ci-dessus) améliore certes la tenue au fluage, mais elle conduit aussi à un fluage tertiaire très brutal, probablement lié à l'apparition de modes de déformation et d'endommagement inter granulaires [66] : la question de cette compétition entre modes de déformation doit être examinée en détail. Si le fluage des alliages Fe–Cr est effectivement ralenti par la dispersion d'oxyde, la question du fluage d'irradiation est encore largement ouverte.

<sup>83</sup> La **gaine**, partie externe du crayon de combustible subit environ **10 déplacement** par atome (noté dpa) dans un REP en 5 ans et **150 dpa** dans un RNR. Pour avoir un repère, ajoutons que la **cœur** du réacteur nucléaire d'un REP, reçoit en 40 ans de service, 0,1 dpa. (La tenue d'un matériau, par exemple le métal de la gaine de combustible à ces irradiations, aux hautes températures, est étudiée à l'instrument JANNUS du CEA/Saclay, en simulant ces durées par des ions accélérés. Avec un jour d'irradiation par des ions accélérés, on simule un dépôt de 100 dpa.) On voit ainsi l'importance d'avoir une gaine supportant toutes ces atteintes.

<sup>84</sup> La **température d'entrée de l'eau de refroidissement du cœur** dans le réacteur est de 290 °C. Celle-ci fixe la base de température de tout le réacteur. Elle est elle-même fixée par la source froide, donc par les performances (débit et température de l'eau froide) des condenseurs. Cette température du cœur commande la pression nécessaire pour éviter l'ébullition de l'eau au contact de la gaine, ce qui diminuerait son refroidissement et provoquerait son échauffement. La température dans la pastille de UO<sub>2</sub>, qui gonflée appuie sur la gaine, est de 1200–1800 °C au centre de la pastille et, à cause de la faible conductivité thermique de l'oxyde, de 500 à 600 °C le long de la gaine ([36], p. 332). Ce sont donc les températures de la source chaude du système thermodynamique qu'est la centrale électronucléaire. Le travail (au sens thermodynamique du mot) que fournira l'énergie de cette source, sera la rotation de la turbine, à ses différents étages.

<sup>85</sup> Les produits de fission à l'état gazeux sont le xénon et le krypton. Leur rapport de production est d'environ 10 pour un taux de combustion d'environ 60 GWjour/tmli et un enrichissement de 3,25% [36, pp. 324–329]. Dans un cm<sup>3</sup> de pastille de combustible UO<sub>2</sub>, il y a environ 1,9 cm<sup>3</sup> (pression atmosphérique ; température de 20 °C) de ces gaz. Les produits de fission donnant des composés volatils dans les conditions thermodynamiques du combustible en irradiation sont le césium, l'iode, le tellure, le rubidium, le brome, le sélénium, le cadmium, l'antimoine.

<sup>86</sup> Le lecteur trouvera dans les réfs. [5] et [67] les raisons de la pertinence de cette quantité physique pour caractériser l'état d'un matériau irradié, de préférence par exemple à la fluence de neutrons subie par le matériau.

<sup>87</sup> On pourrait atteindre 700 °C au point le plus chaud des matériaux de structures pour les matériaux des réacteurs à sels fondus, lesquels font partie du programme international GEN IV. Ils sont étudiés en France au CNRS/Grenoble [29,30,107].

Le fluage d'irradiation est mal compris, même pour des matériaux monophasés [67–69]. Il résulte de la dynamique collective des défauts d'irradiation. Celle-ci est très certainement profondément modifiée par la présence d'une très grande quantité d'interfaces associés aux oxydes dispersés. Les questions de stabilité microstructurales, au cours du procédé de fabrication de ces ODS, et en condition d'irradiation, de comportement au fluage hors irradiation et sous irradiation, sont centrales à l'utilisation de ces matériaux ODS.

La compatibilité de ces matériaux de structures des éléments combustibles avec le sodium liquide doit être examinée (dans l'esprit des études faites sur les aciers 316 pour PHENIX).

Pour ce qui est des matériaux de gaine, on est donc face à un dilemme :

- ou bien se contenter de qualifier des matériaux existants afin de disposer d'une solution viable au moment proche de réaliser le prochain projet de RNR de la GÉNÉRATION IV ;
- ou bien mener une recherche de fond sur les questions énoncées ci-dessus.

Un choix clair de la seconde option permettrait de se donner les moyens de concevoir la génération d'alliage pour le prochain réacteur RNR prototype à l'échelle un. La nécessité impérieuse de mener le premier type d'étude ne doit pas occulter l'avantage de mener des travaux de compréhension en profondeur. Ceux-ci, seuls, permettraient de contrôler, non pas seulement le fonctionnement des prochains réacteurs RNR, mais aussi leur vieillissement. Les retours d'expérience en termes d'expérimentation et de modélisation de 40 ans d'industrie électronucléaire, et le délai restant avant le développement industriel de la prochaine génération plaident pour lancer des études de fond sur les questions identifiées comme discriminantes dans le choix des matériaux. Plus que tout autre composant, la gaine du combustible, première protection contre tout incident, a besoin de cette catégorie d'études expérimentales.

Il importe de disposer pour l'ensemble de ces études sur les matériaux, d'une part d'un retour d'expérience structuré des choix passés [70–73], mais aussi de connaissances sur les mécanismes fondamentaux des dommages d'irradiation et de leurs conséquences. Ceci passe par l'étude de matériaux modèles et de programmes de recherche structurés à fin de compréhension, et non à des fins uniques de qualification [74–82]. Il est essentiel de disposer de moyens d'irradiation accessibles et suffisants (comme le dispositif JANNUS récemment mis en place à Saclay, mais aussi comme le futur réacteur Jules Horowitz-situé au CEA/Cadarache – pour les irradiations aux neutrons). Enfin, il faut pouvoir effectuer des travaux permettant de développer des essais sur des petites quantités de matériaux qui soient néanmoins utiles pour fournir des grandeurs macroscopiques. Sur ce dernier point, les efforts faits pour comprendre l'essai de nano-indentation sont très prometteurs [83,84], mais on peut aussi envisager des essais de micro éprouvettes issues de la microélectronique [85,86].

#### 4.2.3. Le sort des transuraniens

La question du sort des isotopes transuraniens (y compris le plutonium) formés tant dans les réacteurs (par capture de neutrons ou désintégrations) que par désintégrations après la sortie des combustibles du réacteur<sup>88</sup> est un problème mondial. Les producteurs d'électricité, les exploitants des centrales électronucléaires de la France sont en particulier concernés à cause des grandes quantités de plutonium que les industriels français ont séparées chimiquement, puis fabriquées en combustible MOX, et irradiés à nouveau dans le parc de producteur national d'électricité. (On a vu **qu'un immense avantage en est que ce plutonium contient une si faible proportion d'isotopes impairs du plutonium qu'il est impropre à la fabrication d'armes nucléaires.**<sup>89</sup>) Ces éléments combustibles MOX irradiés sont dans des piscines en France<sup>90</sup> et s'y accumulent progressivement à la cadence actuelle de 120 tonnes (comptés en tonnes de métal lourd initial, noté **tmli**) par an. Il faut ajouter que **pour combustible potentiel, la France dispose d'environ 200 000 tonnes d'uranium appauvri**<sup>91</sup> entreposées à l'Usine Georges Besse,<sup>92</sup> résidus<sup>93</sup> de l'enrichissement [108] à l'usine Georges Besse de 7000 à 8000 tonnes<sup>94</sup> d'uranium naturel

<sup>88</sup> Par exemple, plutonium 241 (demi-vie  $\beta$  de 14,4 ans)  $\rightarrow$  americium 241.

<sup>89</sup> Le deuxième bénéfice est que le contenu en plutonium d'un MOX usé rassemble le plutonium issu du retraitement de sept éléments combustibles UOX irradiés auquel il faut ajouter un élément UOX du cœur remplacé par un MOX, soit en tout le plutonium de **huit** UOX irradiés rassemblés en **un seul** MOX irradié, pour ce qui est d'un entreposage ou d'un stockage définitif, suivant l'option choisie par les Français. Quand au bilan économique, il dépend de l'énergie de fission obtenue par la combustion de cet élément MOX, donc du taux de combustion autorisé, en MW/jour/tonne de métal lourd initial, donc encore des tenues des matériaux utilisés, pour la gaine, pour les embouts, etc.

<sup>90</sup> Voir R. Dautray [1] : document 5, p. 206, document 10 et 1, p. 210 et composition isotopique de ces plutonium, pp. 109–110. En résumé, les MOX irradiés contiennent environ 6–7% de plutonium, dont plus de 4% de l'isotope 238, 36% de l'isotope 239, 31% de l'isotope 240, 14% de l'isotope 241, 13% de l'isotope 242 (pour un enrichissement initial en uranium 235 de 3,5% et un taux de combustion de 45 GWjour/tonne de métal lourd initial). La production de la France en est de l'ordre de 10 tonnes par an. Actuellement, en 2011, la France détient, dans ses piscines de refroidissement, plus de 200 tonnes de plutonium. Après 40 ans de fonctionnement du parc français des centrales électronucléaires (existantes actuellement) du producteur national, il y en aura 650 tonnes de plutonium contenu, et bien dilué, dans ces MOX irradiés.

<sup>91</sup> Parmi les neutrons rapides, ceux dont l'énergie cinétique dépasse environ 0,8 MeV, (rappelons que les neutrons, à leur naissance, lors d'une fission, ont une énergie cinétique d'environ 2 MeV en moyenne) induisent des fissions dans l'uranium 238. Le rapport du nombre de fissions dans l'U238 au nombre total de fissions est, dans un RNR, d'environ 0,12 Pour un REP, ce rapport est d'environ 0,08 (voir les documents 122–123, pp. 294–295 de [1]).

<sup>92</sup> Située près du Tricastin.

<sup>93</sup> Cet uranium est sous la forme chimique d'hexafluorure d'uranium UF<sub>6</sub>.

<sup>94</sup> Un rappel du vocabulaire du cycle de combustible du nucléaire civil est donné en Annexe A et les nombres importants pour ce cycle du combustible sont donnés en Annexe B.

traitées chaque année, dont on obtient 1000 à 1200 tonnes d'uranium enrichi à 3,5 à 4 % d'uranium 235.<sup>95</sup> Comme nous l'avons déjà signalé, **ce sont ces tonnages d'uranium et de plutonium qui peuvent servir à développer les RNR en France.**

## 5. Les leçons de la crise énergétique actuelle qui se dessinent dans l'entrelacement des autres crises

Après le changement climatique en cours, la raréfaction des ressources minérales énergétiques fossiles, la montée de leurs prix, les conflits liés aux sources d'énergie, les conséquences tirées par certains acteurs de la production d'énergie électrique et la montée d'une demande et d'une offre en matière électronucléaire, voilà que la crise de Fukushima,<sup>96</sup> fait réexaminer par les politiques, en particulier, les deux aspects suivants de l'énergie électronucléaire : les leçons qui portent directement sur la gestion de la production d'électricité nucléaire, et les leçons, plus profondes, qui impliquent une vision mondiale des préoccupations de sécurité, en terme de prévention et de gestion des risques. La rapidité de diffusion des informations, plus ou moins fiables, mêlant débat politique liée à des événements spectaculaires, et validité des connaissances scientifiques, à l'époque d'Internet, rend d'autant plus indispensable une réflexion à tête reposée. ...

### 5.1. Les leçons à court et moyen terme : une préoccupation légitime et inéluctable

- Pour ce qui est des leçons à court terme, le **fond du problème de la crise de radioactivité en cours au Japon**, des précédentes crises d'installations nucléaires et des conséquences à en tirer, explicite et souligne une situation de l'électronucléaire, bien connue de certains spécialistes, mais sur laquelle, maintenant, tous les acteurs de l'énergie et tous les consommateurs d'énergie du monde entier, les médias, les administrations et les hautes autorités du pays, doivent avoir une vue d'ensemble à court, moyen et long terme sur tous les aspects, directs et indirects.
- Pour ce qui est **du moyen terme**, après les crises nucléaires de nature différentes (en Grande Bretagne, aux Etats Unis, en Union Soviétique, au Japon, etc.) dans les réacteurs à fission d'une centrale électronucléaire (y compris les piscines de refroidissement, les réservoirs de solutions de corps fissile, de produits de fission, de sodium, de graphite irradié, etc.) et les autres installations nucléaires, on peut se demander si les **préoccupations** sur l'emploi présent et futur (à l'échelle humaine) de l'énergie de fission électronucléaire dans telle ou telle région pour desservir telle ou telle population, **sont légitimes.**
- **L'une d'elles est inéluctable** et conduit à examiner, sans les diverses préventions existantes, le fait suivant : c'est que **toute centrale électronucléaire comme les installations associées du cycles de combustible, devrait impliquer** (où qu'elle soit située dans le monde), **que des techniciens particulièrement compétents, soient prêts à intervenir, avec les infrastructures nationales et régionales nécessaires, à tout moment, en cas d'évènements naturels** (inondations, sécheresses, tempête, tornade, vague de chaleur, incendie, volcanisme et ses rejets de poussières, séismes, tsunami, agression, malveillance,<sup>97</sup> etc.) **ou de bouleversements** politiques, sociaux, religieux, ethniques ou belliqueux. **Une telle surveillance devrait être réalisée et maintenue avec une constante vigilance pendant :**
  - 1 : les trois ou quatre décennies d'**exploitation de la centrale électronucléaire** et des installations nucléaires du **cycle du combustible** ; et
  - 2 : aussi après l'arrêt de production de toute énergie par la centrale électronucléaire, **pendant une durée comprise entre près d'un demi-siècle<sup>98</sup> à un siècle, pour le refroidissement** des éléments combustibles irradiés (= usés), avec les matériaux de structures de ces éléments combustibles, les verres contenant les produits de fission éventuellement séparés, les transuraniens etc.

<sup>95</sup> La signification en terme d'énergie de ce nombre, 200 000 tonnes d'uranium appauvri a été expliqué en note 31 de bas de page, du §2.1.

<sup>96</sup> Les efforts pour décontaminer les zones urbaines (y compris leur intérieur), agricoles (pour rendre les sols cultivables, pour évacuer les déchets de sol, les feuilles mortes, les argiles contaminés,) les forêts, les édifices publics (parcs, etc.), collines, vallées, zones publiques (écoles, universités, terrains d'équitation, forêts, feuilles mortes etc.), les aérosols, etc., sont vastes et devront être poursuivis durant plusieurs années. Une description précise a été effectuée par le Japan Atomic Energy Agency (JAEA) [87–89]. Ajoutons que le césium retenu par ces sols comporte le césium 137 et le césium 134. L'objectif à long terme des travaux de décontamination est d'obtenir partout une dose de radiation inférieure à un milliSievert/an. Pour les sols agricoles, l'objectif est d'obtenir une radioactivité inférieure à 5000 becquerels/kilogramme de terre du sol, sur une profondeur inférieure à celle de la profondeur de la nappe phréatique. La transmission du césium radioactif au riz, a été étudiée, tant pour le présent, que pour la période 1959–2001, pour avoir une base de comparaison. A la fin de 2012, le JAEA fait l'hypothèse de 3000 travailleurs sur le site, et considère aussi les personnels des universités, des entreprises privées participant à ces travaux, tous les ministères concernés, etc. La **population** évacuée est estimée à 150 000 personnes (78 000 pour la « restricted zone », 10 000 pour la « planned evacuation zone », 58 000 pour la « emergency evacuation preparation zone » – cette dernière a été remontée récemment, depuis les estimations effectuées le 30 septembre 2011. Tout cela sera-t- il entièrement remédiable ? Nous le saurons avant la fin de 2012. La crise de Fukushima Dai Ichi Power Plant, nous fait ajouter de nouveaux événements à ceux que nous connaissons par l'expérience. Un fait inéluctable est que même s'il n'y a pas d'atteinte mortelle, ni de pathologie due à la radioactivité, le dommage subi par l'environnement est considérable. La « **remédiation** » est une tâche immense et longue. Ce n'est que dans quelques années que l'on saura si ce dommage à l'environnement est partiellement réversible Une chose est sûre : l'enlèvement du cœur fondu demandera de concevoir, développer, fabriquer et exploiter des techniques nouvelles. Que fera-t-on de tous les déchets radioactifs des cœurs des trois réacteurs et de tout ce qui sera excavé dans l'environnement ?

<sup>97</sup> Une tentative de prendre la maîtrise de la centrale électronucléaire Crystal River, en détruisant les arrivées de puissance électrique et les diesels de secours a été déjouée (réf. [8], pp. 134–135). Une crise industrielle lors d'une coupure de courant a eu lieu dans la centrale électronucléaire de New York State's Nine Mile Point en 1996.

<sup>98</sup> Durée de refroidissement d'environ 30 à 40 ans pour les éléments combustibles à uranium enrichi (usés) en Suède, en Allemagne, au Royaume Uni, au Japon, 30 ans pour les verres contenant les produits de fission et éventuellement les transuraniens dit « mineurs », 60 à 80 ans pour les MOX irradiés.

Ne faut-il reconnaître que ceci suppose une continuité des pouvoirs centraux, de leurs administrations, de leurs agences nationales ou supranationales (Union européenne, Traité Euratom, AIEA et fusion thermonucléaire, etc.) qui, nous le constatons dans plusieurs nations, etc. n'est plus réalisée, depuis quelques décennies ?<sup>99</sup>

## 5.2. Leçons à long terme, le danger de prolifération : vers un contrôle international du cycle des combustibles ?

- Pour ce qui est du **plus long terme** de l'énergie électronucléaire, c'est au niveau des populations humaines du monde, au sein des écosystèmes auxquels elles coopèrent, qu'il faut se situer. Dans le contexte (1) du changement climatique mondial, de la modification de la démographie (y compris la proportion des divers âges des personnes), de l'accès au développement de nombreux pays, de la diminution des ressources en eau, en terres cultivables, en ressources minières ; et (2) compte tenu de la chronologie<sup>100</sup> des urgences des solutions à apporter, nous avons vu que l'énergie nucléaire pourrait jouer un rôle substantiel dans la production d'énergie électrique dès les deux décennies futures. Toutefois, **le défi considérable** est posé par l'évolution implacable des technologies d'armement, et qui n'est pas seulement le problème de la France, de l'Allemagne, de l'Europe, des Etats Unis, de l'Union Indienne, de la Chine, de la Russie ou du Japon, mais celui de la population mondiale. C'est celui des « menaces nucléaires » c'est-à-dire de la prolifération d'engins explosifs nucléaires ou de la dispersion avec envoi de matières radioactives sur les humains et le vivant, soit par l'action d'engins nucléaires,<sup>101</sup> soit par tout autre moyen, dont le déclenchement d'un accident sur le nucléaire civil. Cela suppose une prise de conscience de la nécessité d'une politique énergétique et de sa sécurité au niveau international, et non pas strictement limitée au niveau national. En raison de la portée des dégâts d'un accident, et de la durée de vie des déchets à gérer en aval de la production d'électricité nucléaire, on ne peut se satisfaire, au moins pour ce qui est des déchets de haute activité à vie longue, d'une approche exclusivement nationale. Pour cela, il faudrait un **contrôle<sup>102</sup> international de tout le cycle du combustible dans le monde**. Ceci impliquerait un accord des grandes puissances nucléaires, donc un aspect politique, donc un « gendarme », avec des moyens d'accès aux informations, mais aussi des aspects scientifiques, techniques, industriels, de transports, de sécurité, de contrôles non destructifs in situ de toutes catégories, Il va de soit que c'est impossible dans la situation actuelle de subsidiarité. Cela pourrait devenir possible, et acceptable du point de vue des souverainetés, en cas de **crise malveillante ou inattendue** [8], comme ce fut le cas pour la puissance résiduelle des éléments combustibles à Fukushima Dai Ichi. Ce drame a conduit à ce que l'on traite de la durée du séjour dans les piscines de refroidissement, du calendrier des puissances résiduelles, et de l'incomplétude de la sûreté et de la sécurité. Autant s'y préparer d'avance, du point de vue sciences et techniques.
- Cela veut dire aussi l'existence de **sites internationaux d'entreposage et de stockage des déchets radioactifs** de toutes catégories [94] et [19], en traçant la borne de subsidiarité<sup>103</sup> (par exemple, les déchets de faible radioactivité sont actuellement stockés à l'échelle nationale – Centre Faible/Moyenne Activité/Manche et Aube, CEA/Marcoule, CEA/Cadarache, etc. – en France).
- Cela veut dire aussi un plan français « **Isotopes du plutonium** », et quand l'accord des grandes puissances nucléaires le permettrait, un plan international avec des installations nucléaires accolées aux usines de retraitement et à leurs laboratoires.

Pour rebâtir la confiance entre les citoyens et les acteurs du nucléaires, peut-on prouver par des faits qu'après l'exploitation d'une centrale électronucléaire ou toute autre installation nucléaire, leur démantèlement et les entreposage/stockage de ces installations nucléaires, on pourrait **revenir à l'état initial de terrain tout libre d'emploi**. Ceci a été réalisé pour la

<sup>99</sup> Les exemples de l'extraction du plutonium en France, de la terminaison brutale des RNR en témoignent. La question du stockage du graphite irradié dans le Royaume Uni, en France, en Espagne, sont un autre exemple. Dans les événements récents au Japon, la mise en évidence de l'absence de responsable technique d'un seul réacteur pour chacun des réacteurs ou de chaque centrale électronucléaire au Japon, est aussi symptomatique de cette non continuité croissante des pouvoirs centraux.

<sup>100</sup> Pour la chronologie, la datation radioactive continue d'être un outil efficace. Par exemple, comme c'est le cas de la proportion carbone 14/carbone 12, le rapport entre la concentration de l'iode 131 et la concentration en césium 137, après l'arrêt du réacteur, permet de dater la création de cet iode 131, descendant du produit de fission Sn 131. On peut ainsi dater l'arrêt des réactions en chaîne [91]. Il va de soi que la forme chimique intervient. L'une d'entre elles est CsI, qui en milieu aqueux donne naissance aux deux ions Iode et Césium déjà cités. Les méthodes et les lieux de mesures interviennent aussi. Cf. communication de Maurice Leroy en Annexe C.

<sup>101</sup> Le mot de langue anglaise est « nuclear devices ».

<sup>102</sup> Un contrôle nécessite des instruments de mesure. Un contrôle non intrusif des quantités de matières fissiles présentes dans un équipement est-il scientifiquement et techniquement possible ? Des pistes ont été ouvertes par des études du Lawrence Livermore National Laboratory depuis des nombreuses années et ont donné lieu à des réalisations d'équipements mobiles. La dernière orientation est, [92], R. Vogt et J. Randrop : Event-by-event study of neutron observables in spontaneous fission and thermal fission.

<sup>103</sup> Constatons que l'Union Européenne a effectué d'excellentes études de comparaison des méthodes de stockage définitif des éléments combustibles usés, de transmutation, de géologie, de neutronique, etc. depuis plusieurs décennies. Les besoins de stockage de pays comme la Lituanie, la Tchéquie, la Slovaquie, la Bulgarie, etc. sont critiques, et cela depuis longtemps. Aucun stockage de matériaux très radioactif n'existe en Europe, en dehors des programmes français (avec les réalisations de sites de stockage de La Manche, de l'Aube, les fructueuses études du laboratoire souterrain de l'Est, dans le cadre d'une loi créée par le Parlement le 28 juin 2006) et du programme de la Suède.

centrale de Berkeley (« Advanced Graphite Reactor » : 138 MWé ; exploitation de 1963 à 1989 ; démantèlement depuis l'arrêt jusqu'à 2010), pour le réacteur de puissance de Windscale (28 MWé ; 1963–1981<sup>104</sup>) au Royaume Uni et pour plusieurs installations aux Etats-Unis.<sup>105</sup>

On peut se demander pourquoi, parmi les 161–72 = 89 produits (directs) de fission, il n'est question, dans les annonces au public par les spécialistes de la radioprotection, que du césium 137 (et accessoirement du césium 134) et de l'iode 231. Ce ne sont pas les descendants de produits de fission les plus radioactifs. L'Encadré 4 qui suit (et aussi l'Annexe E) pour la chimie des produits de fission, qui gouverne leur volatilité, leur fixation sur les surfaces, en présente le détail. Cette Annexe E présente aussi les aspects biologiques. Il y a 31 produits de fission directs, stables, 52 ayant une demi-vie inférieure à une heure, et 11 de plus, soit 63 produits de fissions directs (sur 161) de demi-vie inférieure à un jour [14]. Le premier jour suivant l'arrêt d'un réacteur voit donc la diminution de sa puissance résiduelle la plus rapide.

Les neutrons présents dans le cœur du réacteur au moment de son arrêt ont une demi-vie<sup>106</sup> de 10,3 minutes.<sup>107</sup> Donc, rapidement, il n'en reste plus pour déclencher des fissions, sauf la petite fraction des neutrons issus des fissions spontanées du Pu240, Pu242, curium 244, etc. qui sont proportionnels aux désintégrations, infimes pour ce qui est de la puissance résiduelle, notables pour la radioprotection et dirimant pour un emploi dans un engin nucléaire.

#### Encadré 4 : L'exemple du césium et des radionucléides à vie courte

Quelques ordres de grandeurs vont permettre de situer les uns par rapports aux autres des problèmes **de radioactivité**, qu'on pourrait croire, à priori très éloignés. Le bombardement de Hiroshima (voir les rapports de l'ONU [www.unscear.org/](http://www.unscear.org/) et dans [www.icrp.org/](http://www.icrp.org/) et les réfs. [94,103] et [110]) en août 1945 a donné lieu à **la fission de moins qu'un kilogramme de matières fissiles** (c'était de l'uranium enrichi à plus de 90% de l'isotope 235), dispersant en retombées sur la ville, bien moins de un kilogramme de produits de fission, donc **moins de 60 grammes de césium 137**, descendant du produit de fission **iode 137**, par plusieurs désintégrations bêta, durant environ 4 minutes. (Un réacteur nucléaire civil d'une puissance électrique de 1000 Mégawatts produit chaque année environ

<sup>104</sup> Le réacteur de Windscale : "Selected as the UK's national demonstration exercise for the decommissioning of a power nuclear reactor. The first years of the decommissioning project were spent designing the necessary components, modifying the structure and installing the equipment. The work was organized in 20 annual campaigns. The dismantling and decommissioning skills built up through the Windscale AGR project will be used in other high hazard reduction projects across the Sellafield site and the wider nuclear industry." Aujourd'hui le projet est terminé. L'ensemble des matériaux, sauf les éléments combustibles usés, a été placé en entreposage passif ("Passive storage"). Il a atteint ses **objectifs** (Safely dismantle, process, and place into passive storage an industrial scale power generating nuclear reactor"), dont son calendrier et ses coûts. Un rapport de synthèse a été publié, avec toutes les références bibliographiques. Tout cela a été effectué sous l'égide d'une Autorité de Démantèlement : "The Nuclear Decommissioning Authority (NDA) is a non-departmental public body of the United Kingdom formed by the Energy Act 2004 .... Its purpose is to deliver the decommissioning and clean-up of the UK civil nuclear legacy in a safe and cost-effective manner, and where possible, to accelerate programmes of work that reduce hazard". Cette NDA publie un rapport annuel détaillé tant de ses activités que de l'état des réacteurs nucléaires du Royaume Uni, en ce qui concerne l'état des installations nucléaires arrêtées.

<sup>105</sup> Aux **Etats Unis**, un total de 31 réacteurs de puissance a été fermé et démantelé en fin de vie normale. Le retour au terrain libre d'emploi ne pose pas de problèmes. Par exemple, ce retour dit « Greenfield open to visitors » a été obtenu pour les centrales électronucléaires de Yankee Rowe (PWR de 185 MWélectrique, qui a fonctionné 31 ans, de 1960 à 1991, puis a été démantelé complètement en moins de 20 ans, avec un coût de 608.M \$), de Maine Yankee (860 MWé, fermé en 1996, coût de 635 Millions \$) et de Connecticut Yankee (590 MWé, fermé en 1996, 820 M\$), etc. Par contre, l'entreposage pour refroidissement des éléments combustibles usés devait durer juste **5 ans avant un destin ultime**. Ceci n'a pas été réalisable, faute de site ultime. **La période de refroidissement a alors été portée à 50 ans**. Une commission spéciale (« blue-ribbon commission ») a été créée pour traiter du destin de ces éléments combustibles, compte tenu de leur puissance résiduelle (voir Encadré 2, et Annexe 3), afin de boucler la partie **aval du cycle de combustible**. Il y a actuellement environ 40 000 tonnes d'uranium, plutonium, autres métaux lourds dans les combustibles usés entreposés dans les piscines des centrales électronucléaires des Etats Unis et **20 000 tonnes dans les fûts secs (« canister »), refroidis par un gaz. L'objectif est de placer tous les éléments combustibles des piscines dans de tels fûts, où il resteront sur le site d'entreposage, donc environ 5 décennies, puis seront transportés et placés dans leur site ultime, toujours placés dans le même fût**. Au bout de ces 50 ans, 120 000 tonnes de ces corps contenus seront dans les fûts. Il ne devrait rien rester dans les piscines des centrales nucléaires considérées. (Light at the end of the radwaste disposal tunnel could be real, Science ; volume 333 ; pp. 148–149 et 150–152 ; 8 July 2011.) Une analyse analogue peut être effectuée pour 25 des centrales AGR et Magnox du **Royaume Uni** (« decommissioning has begun at 25 UK reactors ») avec des procédés différents (le graphite irradié contenant du chlore 36 – demi-vie  $\beta$  :  $3,0 \times 10^5$  années – impose des opérations particulières vu son grand volume, quoique de faible radioactivité). A tout cela, il faut ajouter le traitement des matériaux de structures, dans lesquels, comme pour le reste de la radioactivité de ces installations nucléaires, ce sont les demi-vie de l'ordre de grandeur des technologies humaines qui imposent les méthodes de manutention et de transports : Fer 55 de demi-vie  $\beta$  91,7 années ; cobalt 60 de demi-vie  $\beta$  5,27 années, nickel 63 de demi-vie  $\beta$  100 ans ; etc.

L'Agence Internationale de l'Énergie Atomique -AIEA- de l'ONU a reconnu **trois options** agréées pour ces arrêts définitifs de fonctionnement des réacteurs de puissance : **1** : « Immediate Dismantling. This option allows for the facility to be removed from regulatory control relatively soon after shut down or termination of regulated activities. Usually, the final dismantling or decontamination activities begins after a few months or years, depending on the facility. Following removal from regulatory control, **the site is then available for reuse** ; **2** : Safe enclosure, which postpones the final removal of control s for a longer period ; **3** : Entombment which entails the facility into a condition that will allow the remaining on-site radioactive material to remain on-site for a longer period, in the order of 40 to 60 years. » Partout, l'aval du cycle des combustibles, et plus particulièrement, la puissance résiduelle des produits de fission et des transuraniens, imposent les sécurités et les délais de surveillance et d'intervention humaines.

<sup>106</sup> La réaction de désintégration du neutron libre est : neutron  $\rightarrow$  proton + électron + antineutrino électronique. L'énergie cinétique de l'électron va de zéro à 0,7823 MeV, dans cette réaction  $\beta$ , d'interaction faible, le reste d'énergie étant emportée par l'antineutrino. Le neutron est stable, s'il est combiné avec d'autres protons et neutrons dans un noyau d'atome [109].

<sup>107</sup> La vie moyenne du neutron libre [109] "neutron lifetime" ;  $885,7 \pm 0,8$  sec est donc de  $10,3/0,693 = 14,9$  minutes où 0,693 est le logarithme népérien de 2, qui permet de passer d'une **demi vie** de noyau radioactif à la **valeur probable** de la variable aléatoire « durée s'écoulant entre l'instant présent et l'instant de la désintégration radioactive du noyau considéré d'un atome identifié ».

1000 kilogrammes de produits de fission,<sup>108</sup> dont **60 kilogrammes de césium 137 par an – soit 1000 fois plus**. Les nombres communiqués par les autorités du Japon pour la crise de Fukushima, pendant l'été, ne contenaient pas encore les nombres correspondant à l'ensemble du césium 137, ou du césium 134, ni de l'iode<sup>109</sup> 131 rejetés. Toutefois, un rejet de  $7,7 \times 10^{17}$  becquerel avait été cité. La dernière évaluation (A. Stohl et al.: Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-Ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition; Atmos. Chem. Phys. 11 (2011) 4333–4351; European Geosciences Union) qui s'appuie sur des mesures effectuées dans le monde entier, grâce aux détecteurs de l'AIEA, conçus pour rechercher les explosions nucléaires clandestines (Comprehensive nuclear-test-ban Treaty Organization; AIEA/UNO), est de  $3,6 \times 10^{16}$  becquerel (soit environ la moitié de l'émission de césium de Tchernobyl, mesurées avec le même réseau d'instruments), dont  $6,4 \times 10^{12}$  bq ont été déposés sur le Japon. Tout le reste de ce Cs137 a été déposé sur l'océan<sup>110</sup> Pacifique, les vents pendant cette période étant pris en compte. Les émissions de Cs137 ont eu lieu entre le 11 et le 12 mars 2011 pour le réacteur n° 1, le 16 mars pour le réacteur n° 3, peu après pour le réacteur n° 2, puis peu après pour le **piscine du réacteur n° 4**, l'émission de Cs137 s'effondrant vers le 20 mars, suite à l'arrosage par des eaux externes. Le maximum du taux d'émission a atteint  $10^{11}$  becquerel,

<sup>108</sup> Quelques nombres seront utiles au lecteur pour situer lui-même les **ordres de grandeurs**, donc pour localiser les phénomènes prédominants. Les informations données dans cette note permettent d'évaluer rapidement, en fonction de la puissance électrique délivrée par un parc électronucléaire, les flux de matière fissibles nécessaires, les flux des différents produits de fission ou de captures générés, les stocks en constitution. Ces informations résultent de simples « règles de trois ». Le détail des calculs est donné dans la réf. [1]. Le parc électronucléaire français reçoit chaque année environ 1000–1200 tonnes d'uranium enrichi à 3,5–4% d'isotope 238 de l'uranium, soit environ 35–48 tonnes d'uranium 235. Celui-ci entre, sous forme d'éléments combustibles, dans les cœurs des réacteurs. Une grande majorité de ces noyaux donnera lieu à des absorptions de neutrons, conduisant à des fissions, avec une masse annuelle fissionnée d'environ 30–40 tonnes/an. Une petite minorité de ces absorptions de neutrons conduiront des captures (formant de l'U236). Environ 35–40 tonnes donnent lieu à fission. De plus, une partie de l'isotope U238 contenu dans ces 1000–1200 tonnes chargés chaque année dans les réacteurs du parc, capture des neutrons. Ces noyaux d'U239 deviennent, après des désintégrations  $\beta$ , des noyaux de plutonium 239. Celui-ci absorbe aussi des neutrons, dont la majorité donne des fissions. Enfin, il y a aussi des fissions dans l'U238, provoquées par la partie des neutrons dont l'énergie cinétique est supérieure à environ 0,8 MeV. Rappelons que le spectre d'énergie cinétique des neutrons naissant d'une fission est centré sur la valeur probable de  $2,275 \pm 0,04$  MeV (note 2 de [5]). Il faut une quinzaine de chocs sur l'hydrogène de l'eau pour diminuer son énergie cinétique jusqu'à la valeur de l'agitation thermique de cette eau. Les neutrons qui sont absorbés avant la fin de ce ralentissement, ont donc des énergies cinétiques qui s'étalent entre plus de 1 MeV et toutes les énergies cinétiques intermédiaires.

Enfin, il faudra sortir le combustible du réacteur avant que tout l'U235 soit consommé afin que le cœur du réacteur reste critique jusqu'à la fin de l'irradiation de cet U235.

Le décompte est effectué par plusieurs autres méthodes de calcul dans (R. Dautray [1] pp. 85–86). Pour passer de la **masse de combustible fissile brûlée chaque année**, à l'**énergie thermique du parc nucléaire dégagée chaque année**, et de là, à la **puissance thermique**, puis à la **puissance électrique engendrée par le parc électronucléaire**, il faut tenir compte du rendement thermodynamique de la turbine qui est d'environ 0,34 (R. Dautray [1]). Le phénomène physique qui limite et donc commande ce trop faible rendement, est la température de l'eau quittant le cœur du réacteur. Cette température est elle-même bornée par les tenues en températures et en dommages de radiation par les propriétés des matériaux.

Ces diverses méthodes de calcul aboutissent à environ **50–54 tonnes de matières fissiles consommées par an dans le parc électronucléaire de la France**. Ceci fait un peu moins d'**une tonne/an de matière fissile fissionnée par GigaWatt électrique produite dans le parc électronucléaire de la France**. Ce sont **ces deux nombres que nous proposons au lecteur de retenir**.

Une autre méthode pour calculer la **masse annuelle de noyaux fissiles consommée par le parc électronucléaire actuel du producteur français d'électricité**, est importante à citer parce qu'elle s'appuie sur les phénomènes physiques à l'échelle de la fission d'un seul noyau de matière fissile. Cette méthode a été proposée dans la réf. [5] (note 12 de bas de p. 653). Elle consiste à partir de l'énergie détaillée d'une fission en MeV (environ 200 MeV) et de la proportion dans cette énergie des différentes contributions (totalité des produits d'une fission, dépôt d'énergie cinétiques des fragments de fission dans le milieu entourant la fission, énergie cinétique des neutrons de fission, absorption dans le cœur des rayons gamma prompts, neutrinos, des électrons de désintégrations des produits de fission dégagé dans un horizon temporel adéquat, etc.). De ces 200 MeV, 180 MeV environ conduisent, dans le cœur du réacteur, à de la production d'énergie thermique. Sachant l'énergie électrique annuelle fournie par le réseau (440 TWh), et le rendement des machines thermiques, on peut en déduire l'énergie thermique nécessaire chaque année, donc le nombre de fissions, donc les tonnages de matières fissiles brûlées (en U235 mais aussi en Pu), donc les masses de corps produits dont la majorité sont des déchets. Le détail des fragments de fission et des particules émises par une fission, avec leurs énergies cinétiques, leurs niveaux d'excitation d'énergie potentielles, le calendrier de leurs désintégrations successives, etc., sont donnés dans la note 12, p. 653, de [5]. On aboutit à ce que un kilogramme de matières fissiles dégage environ  $1,88 \times 10^{13}$  calories, soit environ 17 kilotonnes (la définition de la kilotonne (kt) est 1 kt = la combustion de  $1000 \times 1000$  kg de combustibles chimiques (TNT) =  $10^{12}$  calories). L'intérêt de cette méthode est qu'elle **permet également de calculer, pour une fission, d'autres quantités utiles concernant le bilan des neutrons** et son influence sur tous les phénomènes auxquels ils donnent lieu : proportion des fissions de l'U235, de celles du Pu239, de celles de l'U238, de celles dans des captures dans l'U238, de celles dans le Pu239, de celles dans le Pu240, de celles dans le Pu241, des captures dans les divers matériaux de structures du cœur du réacteur, des fuites de neutrons hors du cœur. D'autre part, cette méthode permet de passer des noyaux émis dans les installations nucléaires civiles à ceux émis par des explosions issues de la prolifération, et donc de comparer des risques de radioactivité.

Tous ces nombres caractérisant le devenir des neutrons produits par une fission sont récapitulés dans le document 123, p. 295 de [1]. Les autres nombres caractéristiques du cycle de combustible des industries de la France sont récapitulés en Annexe A.

<sup>109</sup> L'isotope 131 de l'iode représente 3% des produits de fission. Son activité spécifique, liée à l'inverse de sa **demi-vie de désintégration radioactive**  $\beta$  qui est de 8,04 jours), est de  $4,6 \times 10^{15}$  becquerel/gramme, soit  $1,24 \times 10^5$  curie/gramme. Ce noyau d'iode 131 émet des électrons de 606 keV et devient ainsi le xénon 131, stable. Il émet des rayons gamma d'environ 200 à 800 keV, dont 89% en 360 keV. La **demi-vie biologique de l'iode dans le corps humain** (par concentration dans la glande thyroïde) est de 120–138 jours. Mais compte tenu de la diminution de masse de ces noyaux dans le corps par radioactivité  $\beta$ , la demi-vie composant ces **deux phénomènes de disparition hors du corps** humain, n'est, effectivement que de 7,6 jours.

<sup>110</sup> Une étude expérimentale in situ, sur les **océans et les diverses mers** (notamment la Manche, la mer Méditerranée et l'océan Atlantique depuis le début du nucléaire a été effectuée [95]).

pendant environ 9 jours,<sup>111</sup> soit environ  $0,8 \times 10^6$  secondes. Ces évaluations ont aussi utilisé le xénon 133, de vie moyenne  $\beta$  5,2 jours (donc de radioactivité élevée) soit ici,  $1,7 \times 10^{19}$  becquerel, – ce qui est plus élevé que la quantité correspondante de l'accident de Tchernobyl,  $1,4 \times 10^{19}$  becquerel, avec un seul réacteur, alors qu'à Fukushima, il y en a trois plus la piscine du 4ème réacteur. C'est la plus grande émission de radioactivité connue, à part les anciens essais nucléaires. Cette valeur élevée semblerait indiquer que tous les gaz nobles contenus dans les trois réacteurs et dans les combustibles de la piscine 4, ont été relâchés dans l'atmosphère, descendant du produit de fission Sb133 (6,6% de la totalité des produits de fission), xénon 133 dont la désintégration aboutit au césium 133, stable, et de la même espèce chimique que le Cs137, de même que le Cs134. (Rappel. Dans un réacteur nucléaire qu'on arrête, la radioactivité totale des produits de fission est d'environ  $10^{18}$  becquerels. Pour donner un repère, ajoutons que la **piscine de refroidissement du réacteur 4**, avec les 1500 tonnes d'eau contaminée, qui a causé tant de difficultés, émettait environ  $10^{11}$  becquerels pendant 4 jours, soit  $0,8 \times 10^6$  secondes.). Cette radioactivité observée à partir des mesures locales diverses à Fukushima, conduirait avec des hypothèses simplistes, à environ **100 kilogrammes de césium** 137 relâchés, qui se désintégreraient durant plusieurs décennies (à cause de la demie vie d'environ 30 ans). Une modification des hypothèses sur le contenu en radionucléides de cette radioactivité ne changerait le résultat que d'une décade. L'isotope 131 de l'iode, descendant de l'étain Sn131, a une durée de vie de 8,02 jours; il s'accumule dans les éléments combustibles, mais inversement se désintègre en xénon 131, stable (2,9% des produits de fission), atteignant une concentration stationnaire des autres radionucléides. Donc, seules les dernières semaines de fissions avant un éventuel incident, participent à son amoncellement. Toutefois, énoncer que sa demi-vie est relativement courte comparée, par exemple au césium 137, c'est dire que sa radioactivité est plus élevée ( $30 \text{ ans}/8 \text{ jours} = 1370$ ). De plus sa nocivité toxique (R. Masse et al.: Radionucléides: Metabolism and toxicity; Maurice Tubiana, Iodine pp. 49–82; Masson, 1982) est beaucoup plus élevée car l'élément chimique iode, si il est ingéré par une personne, est rassemblé dans la glande thyroïde. Dans le cas où cette personne est un enfant, cette glande est relativement petite, donc la concentration de l'iode y est élevée, donc aussi l'irradiation  $\gamma$  subie par cette glande. Signalons enfin que le césium 134 qui a été observé dans les ruptures des gaines des éléments combustibles et dans les essais nucléaires aériens, provient du produit de fission Sb-antimoine 133 (de proportion 6,6% parmi les produits de fission, donc relativement abondant) qui se désintègre par chaînons successifs jusqu'au césium 133, stable, lequel capture un neutron lors de l'irradiation, devient un émetteur bêta de demi-vie 2,06 ans, donc très radioactif (R. Dautray [19] : Sécurité et utilisation hostile du nucléaire civil; De la physique à la biologie).

Remarquons enfin que les mesures effectuées à ce jour, des suites radioactives de l'accident de Fukushima, n'ont pas mis en évidence des doses d'effets des radioactivités des transuraniens (en millisievert, par unité de temps, et aussi sommés sur la durée écoulée depuis le début de l'accident) dépassant les normes internationales.

En résumé :

- 1 : Les conséquences radiologiques de l'accident de Fukushima sont essentiellement dues **au césium à cause de ses propriétés physicochimiques (volatilité, dépôt, etc.) et à l'iode à cause de ses propriétés biologiques**. C'est le dépôt de césium 137 qui est responsable de la contamination d'environ 1000 km<sup>2</sup>, des délais se comptant en décennies pour tenter un retour éventuel, à l'échelle humaine, à une surface libre d'emploi, et du déplacement imposé à des dizaines de milliers de personnes
- 2 : Le relâchement d'une grande partie des gaz des pastilles irradiées, a formé une **accumulation maintenue sous pression par la gaine** (celle-ci a été endommagée dans l'accident de Fukushima et nous avons vu dans cet encadré la fuite considérable de composés volatils qui s'en sont échappés).  
Pour tous les éléments combustibles des réacteurs nucléaires modérés et refroidis à l'eau,<sup>112</sup> cette **gaine** du combustible mesure **moins de 0,6 millimètre d'épaisseur** [36].

<sup>111</sup> Il faut être attentif à ce qu'une radioactivité exprimée en Becquerel, est une **intensité**, à tel instant, en nombre de désintégrations par seconde. Quand on somme ces intensités sur une période de 8 jours, par exemple, on doit multiplier cette intensité par la durée du temps écoulé pendant tel phénomène étudié; par exemple, le rejet issu du réacteur pendant la période de très haute intensité (cette intensité peut varier d'un facteur 100 durant quelques heures [96]). C'est alors un nombre de désintégrations de noyaux qui est obtenu, donc de noyaux, donc une masse, donc une proportion de la masse de ce corps contenue initialement dans le réacteur. Nous en avons vu un exemple dans l'Encadré 4.

<sup>112</sup> Donc, en particulier, les REP 900 MWé et les REP 1350 MWé, dont la gaine a la même épaisseur – 0,57 mm – et le même matériau (p. 29, tableau 1.4 de [36]) pour des raisons de fabrication. La différence entre les éléments combustibles de ces deux modèles de REP tient au nombre d'assemblages – respectivement 157 et 193 – et à leur longueur (respectivement 4,058 mètres et 4,796 mètres. Tout le reste est identique : réseau, nombre de crayons par assemblages, diamètre extérieur de la gaine, diamètre intérieur, épaisseur, diamètre et épaisseur des pastilles, pas des crayons, section de l'assemblage. L'enrichissement en U235 peut être légèrement différent (respectivement, 3,7% et 3,6%) : il commande le taux maximal d'irradiation en réacteur. On a des degrés de liberté supplémentaires pour les gaines des éléments combustibles des RNR, car les neutrons rapides sont relativement peu capturés par les matériaux de structures, ce qui permet, par exemple, l'emploi des aciers les plus robustes pour le cahier des charges des gaines de combustible. Les propriétés de conductibilité thermique, de dilatations thermiques, etc. qui commandent le gradient des efforts à travers la gaine, et donc les déformations éventuelles de la gaine, font aussi partie du cahier des charges du crayon de combustible.

Dans tous les réacteurs nucléaires à eau, la gaine des combustibles est fortement irradiée, à haute température et subit des contraintes mécaniques élevées et variables. Cette détérioration de la gaine, dans les réacteurs de Fukushima et dans les piscines annexes, illustre une fois de plus, **l'importance de développer des matériaux de structures [33] de performances plus élevées que celles d'aujourd'hui, donc de la recherche fondamentale en science des matériaux.**

#### Les radionucléides à vie courte et les variations rapides de la radioactivité

On pourrait penser que les **radionucléides à demie vie très courte par rapport à la durée d'irradiation** dans un réacteur, ne jouent plus de rôle, une fois le combustible sorti du réacteur. Toutefois, il faut être conscient que à partir du début de l'irradiation d'un combustible, les corps à vie courte s'accumulent proportionnellement à la durée écoulée, mais sont aussi détruits tant par les désintégrations spontanées ( $\alpha$ ,  $\beta$ , fissions spontanées, captures d'électrons, que par les absorptions de neutrons. Au bout d'une durée longue relativement à la demi-vie des radionucléides à vie courte, on atteint des proportions des différents nucléides qui restent stationnaires, jusqu'à l'arrêt de l'irradiation. Ce phénomène est capital puisque c'est lui qui commande la quantité **d'iode 131 (demi-vie  $\beta$  : 8,02070 jours)** présente dans les éléments combustibles lors de l'arrêt d'une irradiation et la sortie de cet iode 131. Le **rapport de la radioactivité de l'iode 131 à celui du césium 137** passe d'environ 10 juste après un arrêt d'un réacteur à environ 1/100 au bout de 3 mois [91] malgré sa relativement courte demie vie, l'iode 131 domine la radioactivité pendant près d'un mois, après un arrêt de réacteur et un éventuel relâchement de produits de fission.

La cause de la **toxicité de l'iode 131** (d'abord sous la forme d'un ion négatif I<sup>-</sup> – la couche électronique – 5p<sup>5</sup> absorbant un électron) est que les électrons de 606 keV qu'il émet par désintégration  $\beta$  entraînent des mutations génétiques dans les cellules dans lesquelles cet élément chimique Iode pénètre sous forme d'un ion positif (le composé volatil ICs est séparé par un milieu aqueux en un ion I positif et un ion Cs négatif. Tout milieu biologique se comporte ici comme aqueux). Les cellules voisines sont aussi irradiées par ces électrons de 606 keV. De plus, le descendant de l'iode 131, qui est le xénon 131 est créé sous forme excitée, et revient au niveau d'énergie fondamental en émettant des rayons  $\gamma$  d'énergie 364 keV. Ces mutations peuvent entraîner la mort de la cellule. Si la dose de radiation est relativement faible, les cellules irradiées survivent. Mais alors, elles peuvent entraîner l'amorce d'un cancer. L'élément chimique iode s'accumule préférentiellement dans les glandes thyroïdes sous forme d'hormones thyroïdiennes, comme la thyroxine (Cette hormone est liée à une globuline dans le sérum sanguin, indispensable à la croissance des vertébrés. Cette thyroxine pénètre dans le noyau des cellules, Là, elle se fixe sur un récepteur du noyau. Elle contribue aux fonctions de transcription du génome. Mais plus la glande thyroïde est petite – c'est le cas des enfants, plus la concentration d'une même dose d'iode 131 par unité de volume de la glande, est élevée.

**En résumé, le couplage des propriétés de physique (demi vie de la désintégration  $\beta$ ), physico-chimiques (volatilité des composés etc.) et biologiques, font de l'iode 131, un risque majeur dans le cycle du combustible. La radioprotection est le carrefour de divers phénomènes.**

#### Encadré 5 : Détruire les transuraniens dans les réacteurs de génération IV

Une autre voie, pour **détruire plus vite, par fission, les transuraniens**, serait de tenter de **multiplier par un facteur d'environ 10, le flux de neutrons rapides**. Toutefois cela entraînerait que la puissance dégagée par les fissions serait aussi multipliée par 10. Pour pallier cette impossibilité thermique, il faudrait diviser par 10 la quantité de matière fissile par unité de volume du cœur. Mais alors, le cœur nucléaire ne peut plus être « critique ». Les protagonistes de ce concept y pallient par l'adjonction d'une puissante source de neutrons de forte énergie cinétique, le cœur sous – critique n'étant plus qu'un multiplicateur de puissance. Cela a été étudié au Los Alamos National Laboratory – LANL – par C.D. Bowman (Once-through thermal-spectrum accelerator-driven light water reactor waste destruction without reprocessing: Special on accelerator applications; Los Alamos National Laboratory) durant les années 1980 pour détruire les déchets nucléaires du complexe américain nucléaire-militaire. En utilisant un réacteur à **neutrons thermiques**<sup>113</sup> (après que le grand physicien nucléaire, Hans Bethe – Cornell University – l'ait proposé dans la décennie précédente). Les calculs de Bowman prédisaient que dans son cœur, le **nombre d'absorption de neutrons par unité de temps, conduisant à un état stable du noyau radioactif à passiver, était supérieur au nombre de désintégrations radioactive (voir Annexe C).**

<sup>113</sup> Nous avons rencontré tout au long de ce texte les flux de neutrons, toujours rapides à leur naissance par fission – énergie cinétique moyenne de 2 MeV – puis ralentis par les chocs avec les noyaux d'hydrogène de l'eau (on dit « thermalisés ») dans les réacteurs à eau. L'ordre de grandeur cité est de  $3 \times 10^{14}$  pour les réacteurs à neutrons thermiques des REP à  $10^{15}$  neutrons par cm<sup>2</sup> et par seconde pour les RNR. Il faut être conscient que le flux est le produit de la densité du nombre de neutrons multiplié par leur vitesse. Ceci entraîne que le nombre de neutrons par cm<sup>3</sup> dans le cœur d'un REP est de l'ordre de  $10^8$  à  $10^9$  neutrons par cm<sup>3</sup>, c'est-à-dire la densité du nombre de molécules d'un vide spatial. Il n'y a pas d'inconvénient neutronique d'en augmenter la densité, donc le flux.

En effet la puissance spécifique  $P$  est le produit du flux par la section efficace macroscopique, elle-même proportionnelle à la densité  $n$  de noyaux fissiles,  $P = n\sigma\phi$  (voir « Accelerator Driven Subcritical Reactors » par H. Nifenecker, S. David et O. Méplan, p. 66). On peut avoir  $P$  petit si  $\phi$  est grand mais  $n$  petit. Par contre la durée de vie du noyau est inversement proportionnelle à  $\sigma\phi$  et peut être très courte si  $\phi$  est grand. Ajoutons que l'inventaire de matière fissile est faible en ce cas.

Ces études ont été approfondies par M. Salvatores (CEA/Cadarache) et son équipe, en utilisant un cœur de réacteur à **neutrons rapides** [97] et par H. Nifenecker [107] au CNRS à Grenoble. Ils développèrent de puissantes méthodes générales de neutronique (voir note 30 de bas de page), valables pour tous les types de réacteur nucléaire, permettant des comparaisons de toutes les physiques de réacteurs. Des expériences avec les réacteurs à puissance très faible, dite « nulle » furent réalisées au CEA/Cadarache. Ces travaux ont été continués par M. Salvatores au National Argonne Laboratory et par un projet européen (MYRRHA<sup>114</sup>) mené par les agences belges du nucléaire. Sur le plan du nombre de neutrons nécessaire pour fissionner ces transuraniens, relativement au nombre de neutrons produits par fission dans un tel réacteur sous-critique, les études de neutronique du CEA/Cadarache ont montré que l'économie des neutrons était favorable [98]. Ces études ont été appliquées à des systèmes fusion/fission par la même équipe [99]. Ces méthodes de neutronique<sup>115</sup> sont si fécondes qu'elles s'appliquent à tous les types de réacteurs nucléaires, permettant des comparaisons de toutes les physiques neutroniques de réacteurs.

**Toutefois sur les plans techniques et industriels, sur celui de l'exploitation [13], enfin le plus important, sur le plan des types d'exposition radioactive (à cause des émissions de neutrons de très hautes énergies cinétiques) et de la sécurité de tout le cycle de combustibles, un immense travail, comparable à celui de la fusion thermonucléaire resterait à effectuer si on voulait détruire par fission une proportion notable des transuraniens autres que le plutonium. Nous ne pensons pas pouvoir compter sur un déploiement de la destruction des autres transuraniens que le plutonium, durant les deux prochaines décennies. Il nous faudra gérer plus simplement pendant cette période, comme la Suède, le Royaume Uni, les Etats Unis, etc. la fin du cycle du combustible.**

### 5.3. Le calendrier de l'offre et de la demande énergétique dans le calendrier des crises, dont la crise climatique

Le **calendrier** de la demande mondiale d'énergie<sup>116</sup> et de l'offre possible, compte tenu des ressources minérales associées aux prix, aux performances des systèmes de consommation, de production, de transport de toutes catégories, est à étudier dans le contexte du temps qui s'écoule. Le charbon a mis plus de quarante ans pour succéder, en Occident, à la moitié du bois. Le pétrole, lui, a mis une cinquantaine d'années à remplacer la moitié du charbon et à satisfaire des besoins que ses performances créaient elles-même (moteurs à combustion interne, turbine à vapeur, puis à gaz). On peut en dire autant du gaz naturel et de sa montée en cours. Actuellement, pour ce qui est de la capacité de production d'électricité dans le monde (12 000 GigaWatt), la moitié provient des combustibles fossiles (charbon : 2800 GWélectrique,<sup>117</sup> vie moyenne d'une centrale à charbon : 40 ans ; gaz naturel<sup>118</sup> : 960 GW ; hydroélectrique : 675 GW, vie moyenne, 75 à 100 ans).

Pour les **transports**, dans le monde entier, l'augmentation de la demande annuelle d'énergie consommée, suivant le scénario dit New Policies Scenarios, durant la période 2009–2038, serait environ 1000<sup>119</sup> Mégatonnes Equivalent Pétrole de consommation finale (d'après la réf. [102] International Energy Agency ; Energy outlook ; 2011 ; Fig. 2.12, p. 87 et Chapter 2 ; Energy projections to 2035, pp. 69–102 ; Chapter 3, Oil market output, pp. 103–154, including – Focus on the Transport Sector, pp. 109–118). Près de 100% de cette énergie vient actuellement du pétrole. Il faudra au moins 40 ans pour à la fois remplacer ces capacités par des énergies renouvelables (Vent : 204 GW, avec une progression annuelle de 20–30% ; Solaire Photovoltaïque : 154 GW, avec une croissance de 40% par an et aussi subvenir au doublement de la demande, soutenue par la croissance démographique et l'amélioration des niveaux de vie). Quarante ans, cela veut dire, que jusqu'en 2050, on continuera à déverser des gaz de combustion en faisant pénétrer, au mieux, les techniques (chères) de capture et de séquestration (mais pas pour les transports, ni pour l'agriculture, ni pour les villages du monde en développement, c'est

<sup>114</sup> MYRRHA : **Multi-purpose hYbrid Research Reactor for High-tech Applications**. MYRRHA, “a flexible **fast spectrum** research reactor (50–100 MW<sub>thermique</sub>) is conceived as an accelerator driven system (ADS), able to operate in sub-critical and critical modes. It contains a proton accelerator of 600 MeV, a spallation target and a multiplying core with MOX fuel, cooled by liquid lead-bismuth (Pb–Bi)”.

<sup>115</sup> Ces méthodes de neutronique sont exposées dans R. Dautray [1], pp. 75–79, encadré III.

<sup>116</sup> Voir [100], Primary energy demand, p. 81 ; Regional trends, p. 84 ; Sectorial trends, p. 88 ; World Energy outlook ; International Energy Agency ; 2010 ; et Energy projections to 2035 : pp. 69–99 and Chapter 12 : The implications of less nuclear power ; pp. 450–469 ; World Energy outlook ; International Energy Agency ; 2011.

<sup>117</sup> Le rendement d'une centrale électrique alimentée au charbon est actuellement de 38%. On vient de 12% au début du XXI<sup>ème</sup> siècle, pour les locomotives. Pour augmenter ce rendement, il faut récupérer des gaz chauds afin de s'approcher d'un rendement thermodynamique optimal, qui est le rendement d'un cycle de la vapeur d'eau qui soit réversible, mais surtout **augmenter la température de la source chaude** qu'est la chaudière et tous les équipements, pompes, vannes, tuyaux, secours, cuves, etc. On retrouve les phénomènes de tenue **des matériaux à haute température**, pendant de très longues durées (10<sup>4</sup> à 10<sup>5</sup> heures), sous des contraintes mécaniques variables (fatigue) et souvent tridimensionnelles, avec les assemblages actuellement par soudure. On peut en dire autant pour les centrales électriques à pétrole ou à gaz naturel.

<sup>118</sup> L'émission de gaz carbonique par la combustion du gaz naturel, comptée en masse de carbone contenue, est d'environ 0,4 à 0,5 kilogramme par kilowatt heure. Dans le cas du charbon, elle est d'environ 1 kilogramme/kWh.

<sup>119</sup> Les bâtiments font un peu moins et l'industrie un peu plus. Voir [100] et [101].

à dire pour la plus grande partie de l'humanité. Ces énergies renouvelables arriveront à une part substantielle de l'offre d'énergie, mais en un demi-siècle au mieux.<sup>120</sup>

#### 5.4. Quelles sont actuellement les options électronucléaires ouvertes aux Français

La France a montré que le nucléaire (400 GW installé dans le monde, avec une croissance annuelle d'environ 2%, dont 63 GW en France), est une option fiable, quand on la compare au charbon, au pétrole, au gaz naturel. On a vu que plusieurs stratégies sont possibles.

Il faut présenter aux Français plusieurs stratégies entre lesquelles choisir : Où en sommes-nous ?

##### 5.4.1. Un principe de sécurité : découpler les problèmes

- **Peut-on aller encore plus loin pour améliorer la sécurité de nos installations nucléaires existantes ?** Ce sont évidemment les agences, les industriels, les laboratoires et surtout les compétences médicales concernées qui peuvent et doivent répondre. Mais s'il est permis à des physiciens de s'exprimer à titre personnel, ce serait, comme l'a fait récemment aux Etats Unis Raymond Orbach, ancien directeur de la science au DOE, au cours d'une réunion de l'«American Physical Society», par exemple : partout où c'est possible, il faut **découpler les risques afin qu'un évènement grave n'entraîne pas automatiquement tel autre, donc faire simple**. C'est une des raisons du succès de la filière REP et de son cycle de combustible. La technologie des dispositifs à eau ordinaire est ancienne, solide et transparente.
- **Dans l'optique de la génération IV** qui s'écarte de l'eau comme fluide caloporteur, le choix de fluides comme le sodium liquide (ou le plomb liquide) ou le recours à des fluides gazeux impose plus encore la nécessité de **concevoir** les installations nucléaires et les procédés qu'elles mettent en fonctionnement, de façon à **découpler les sources possibles** d'accidents. Le développement de circuits intermédiaires, ou la possibilité de prendre un caloporteur sans transformation de phase vont en ce sens. L'exigence de température accrue pour le fonctionnement des réacteurs pose des requêtes très sévères sur les matériaux. Il est impératif que cette recherche du matériau optimal (en particulier pour le gainage combustible qu'on ne peut pas sur-dimensionner) ne se fasse pas aux dépens de la sécurité, en oubliant les exigences de mise en œuvre (mise en forme sans défaut, assemblage, ...). Enfin la sécurité impose le développement de moyens de contrôle non destructif et de suivi de maintenance qui sont, en eux-mêmes, des défis technologiques.

##### 5.4.2. Maîtriser le cycle du combustible

- **Comment améliorer, à tous les sens du terme, le cycle de combustible des installations électronucléaires ?** Ce cycle inclut des manipulations (sur des corps radioactifs, avec une puissance résiduelle durant plusieurs décennies, des émissions de neutrons), des transvasements (par exemple, de boues des traitements chimiques), des transports, etc. Les problèmes de santé, donc de radioprotection les plus graves, dans d'autres régions du monde, pourraient y être attachés. Les contraintes de calendrier, de place dans les entreposages, de débit des stocks de matières, sont quelquefois non compatibles. Il faut acquérir de la flexibilité, de l'ouverture à des technologies et des procédés nouveaux souhaités par les citoyens, de la souplesse pour s'adapter aux faits nouveaux, du temps, donc des possibilités de choix par les citoyens et pour cela donc réaliser un ou des **entreposages provisoires pour les matières les plus radioactives**, en attendant qu'un ou des sites d'enfouissements définitifs existent (voir l'Encadré 6).
- L'AIEA examine depuis des décennies comment réduire les risques de **prolifération**, en ce qui concerne l'accès de certains pays ou organismes aux matières nucléaires. Une solution serait que tous les flux de matières<sup>121</sup> et les stocks nucléaires deviennent internationaux, gérés par des organismes dépendant des agences de l'ONU. C'est dire que la maîtrise de la prolifération des explosifs nucléaires devrait passer, tôt ou tard, par la **maîtrise internationale du cycle de combustible**.<sup>122</sup>

**La France qui maîtrise tous les composants, tous les équipements, tous les métiers, tous les procédés de ces cycles de combustibles et toutes les connaissances et les techniques des armes nucléaires, peut y jouer un rôle international essentiel de croissance et de maintien de la sécurité nucléaire civile et militaire.**

#### Encadré 6 : Pour un entreposage intermédiaire

Il nous semble intéressant d'envisager un entreposage intermédiaire des éléments combustibles irradiés (dit « usés ») et des détritits très radioactifs (i.e. les boues de séparation chimique du retraitement ; les matériaux de structures des assemblages combustibles, etc.).

<sup>120</sup> Voir refs. [101,102].

<sup>121</sup> Tant que les technologies d'enrichissement de l'uranium ne pouvaient fonctionner qu'avec de grandes usines, et donc nécessitaient le potentiel d'une nation, pour être réalisées, il y avait là une barrière technologique aux groupes de personnes malveillantes. Mais des technologies nouvelles permettent maintenant de réaliser des petites installations de séparation des isotopes tels que l'uranium 235. Leur faisabilité scientifique a été prouvée. On peut donc se demander si le panorama technologique des productions de matières nucléaires va se modifier sensiblement dans la décennie qui commence. Comment diminuer le risque de dispersion de ces technologies ?

<sup>122</sup> On peut penser que cela ne serait possible que si les grandes puissances nucléaires l'acceptent, ce qui n'est pas du tout le cas actuellement. Toutefois, une crise nucléaire militaire peut survenir et faire modifier les positions des grandes nations. On pourrait, afin d'être prêt, développer maintenant les études scientifiques, techniques et industrielles, pour être au niveau de préparation nécessaire.

Une préoccupation sérieuse est à souligner : qu'on développe des installations nucléaires, dans telle région de la Terre, qu'on les arrête pour vétusté ou pour des causes économiques, qu'on les prolonge, qu'on les modifie pour des raisons diverses il y aura toujours une contradiction entre **(1) les risques potentiels d'une radioactivité mal maîtrisée ou mal gérée, et les contraintes qu'ils imposent aux personnes concernées, et (2) les possibilités d'entreposer en attendant d'être plus informé, ou de disposer d'une technologie, de sites d'entreposage loïsibles.** Pour résoudre ce dilemme, il est nécessaire de réaliser un (ou des) entreposage de sécurité le plus vite possible dans les pays ou union de pays engagés dans l'énergie nucléaire. Les producteurs d'électricité nucléaire de Suède l'ont déjà fait, pour les déchets de faible activité, tant à Oskarshamm qu'à Forsmark. Il en est de même pour la France.

**La sûreté du cycle de combustible consiste bien souvent à se procurer des délais de temps pour rendre compatibles les calendriers des phénomènes indépendants du cycle du combustible.**

## 6. Conclusion générale : que retenir de cette analyse du cycle de combustible du nucléaire tant en France que dans le reste du monde ?

On peut se demander si **les préoccupations concernant l'emploi présent et futur de l'énergie électronucléaire sont justifiées.**

- **L'une d'elles est inéluctable, c'est une exigence de surveillance continue par des équipes compétentes, disposant en permanence d'infrastructures adéquates.** C'est que toute centrale électronucléaire (avec les installations associées du cycle de combustible), toute installation nucléaire, où qu'elle soit située dans le monde, ne devrait impliquer, que des personnels expérimentés, munis des équipements adéquats, s'appuyant sur des infrastructures toujours prêtes, et prêts à intervenir, à tout moment, en cas d'événements naturels (inondations, sécheresse, tempêtes de neige, vagues de chaleur, séisme, tsunami, éruption volcanique et cendres, etc.) ou de bouleversements politiques ou belliqueux (y compris terroristes). Une telle surveillance devrait être maintenue, **tant** pendant le fonctionnement de toute centrale, **qu'après son arrêt**, et ensuite **pendant une durée d'un demi à un siècle** après tout arrêt normal, décidé, accidentel, économique, etc. de cette centrale électronucléaire, y compris pour tous les combustibles et les matériaux de structure irradiés. Le producteur français d'électricité, qui est le plus important du monde, a pu assumer, jusqu'ici, tous les aspects de cette tâche longue et **vigilante**.
- **Une analyse rationnelle des risques** : Peut-on **comparer les risques** associés à des centrales nucléaires, à des cycles de combustibles, à des installations nucléaires comme les piscines, les réductions du volume des déchets par calcination, etc., c'est à dire créer une relation d'ordre entre ces installations, ces procédés, affirmant que qu'une telle installation est plus sûre que telle autre ? Pour des filières différentes et même pour les équipements d'une même filière comme celle des REP d'industriels différents, ce n'est pas démontré. Mais cela l'est entre les évolutions d'un même concept (« design » incrémental), comme les REP de la France et leur aboutissement actuel, l'EPR. Ce dernier représente ce que l'on a fait de mieux en France en matière de centrales électronucléaires, grâce à 4 décennies de retour d'expérience.
- **Une vision de l'ensemble du dispositif est indispensable** : Outre la centrale électronucléaire EPR, il faut examiner les **cycles de combustibles** possibles et comment le citoyen peut choisir entre eux, avec ses représentants légitimes élus ?
- **Ne pas perdre de vue une exigence fondamentale** : La nécessité de réduire les stocks de **plutonium**, tout en les utilisant pour ouvrir des voies de ressources énergétiques nouvelles, passe par la maîtrise des surgénérateurs et de leurs options de cycles de combustibles. Le projet ASTRID avec ses options à choisir, en ouvre les voies.
- **Dans un souci d'efficacité, éviter la dispersion des efforts** : Le succès de la France dans ce domaine industriel, est dû au choix fait dans les années 1970 et consolidé depuis, d'avoir **un seul** modèle de réacteur, **un seul** exploitant, **un seul** constructeur, **un seul** fabricant du cycle de combustible, un puissant **laboratoire** de recherche fondamentale et appliquée, afin de **concentrer** nos forces scientifiques, techniques et industrielles **limitées** sur **un seul objectif**.

## Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier H. Nifenecker et J. Villain pour une relecture critique extrêmement soignée de ce manuscrit avant publication, ainsi que M. Leroy pour sa contribution concernant la chimie du césium (Annexe E).

## Annexe A. Eléments de vocabulaire pour le cycle du combustible, les éléments combustibles dits UOX et MOX, et pour les cœurs des réacteurs des centrales électronucléaires (dites Générations I, II, III, IV)

Les centrales électronucléaires du producteur actuel en France ont comme source de chaleur des réacteurs nucléaires dont les neutrons des réactions en chaîne sont ralentis par de l'eau à haute température (au dessus de 300 °C), qui ne doit pas bouillir pour maintenir le refroidissement des surfaces de combustibles. Pour cela, la pression de l'eau est maintenue au dessus d'environ 140 atmosphères. Le nom de ces réacteurs, est en français Réacteur à Eau sous Pression, soit **REP**, et en anglais « Pressurized Water Reactor », soit **PWR**. Depuis environ deux décennies, le mot « **GENération** » a été introduit. Les

Réacteurs à eau ont été baptisés **GENÉration II**, appelant **GENÉration I**, toutes les autres filières explorées dans ce lointain passé,<sup>123</sup> depuis les années 1945.

A partir des années 1990, un projet de REP, intégrant les leçons de divers accidents et incidents, a été mis au point par les producteurs d'électricité nucléaire français et allemands, les industriels, les laboratoires concernés et les spécialistes de sûreté des deux pays. Il fut nommé « European Pressurized Reactor » (**EPR**). D'autres projets, d'ambitions voisines furent lancés par des industriels des Etats Unis, de Russie, de Corée du Sud, du Japon, de Chine, d'Union Indienne. Tous ces projets furent nommés **GENÉration III**.

Parallèlement, des études de réacteurs dits surgénérateurs, ou encore Réacteur à Neutrons Rapides (**RNR**), sont poursuivies depuis les années 1945 dans tous les pays développant des réalisations nucléaires. Leur mise au point, exigeant des techniques plus complexes,<sup>124</sup> donc plus longues à développer, les fait appeler **GENÉration IV**.

#### A.1. Le vocabulaire des centrales électronucléaires actuelles dites GENÉrations I, II, III et IV et de leur cœur fissile

Un nouveau vocabulaire industriel depuis la fin des années 1990 a conduit l'administration des Etats Unis (« Department of Energy » : DOE) à classer les différents réacteurs nucléaires dans leur chronologie d'apparition. Les entreprises de l'OCDE concernées par l'électronucléaire les ont suivis. Les réacteurs de la quatrième génération, encore à venir, devraient répondre à des exigences accrues en terme de sûreté, d'utilisation du combustible, de non prolifération, tout en restant économiquement viables.

Les réacteurs actuels à eau (sous haute pression ou bouillante), aboutissent finalement à ce que de la vapeur d'eau sous haute pression et température (directement dans le cas des réacteurs à eau bouillante) soit envoyée à la turbine qui fait tourner l'alternateur, lequel produit l'électricité. Quand on cite le rendement thermodynamique de la centrale thermo-nucléaire, système englobant la chaudière nucléaire (la source chaude) jusqu'à la turbine et le condenseur inclus (source froide), c'est principalement du rendement de la turbine à vapeur qu'il s'agit.

Les centrales électronucléaires qui sont actuellement en projet ou en construction, (par exemple, EPR en Finlande et en France, Advanced 1000, dit APWR proposé par Toshiba-Westinghouse, Advanced **Boiling Water Reactor**, proposé par General Electric-Hitachi, EPR proposé par AREVA et Mitsubishi-Areva, « RusseAtom », la Corée du sud, etc.) sont dits de **troisième génération**. Les différences scientifiques et techniques entre la deuxième génération et la troisième, sont que cette troisième génération :

- 1 : tout en gardant tous les concepts physiques des Réacteurs à eau ;**
- 2 : tire, pour les équipements de secours en cas d'événements non prévus**, les leçons des accidents comme ceux de Windscale (1957), Three Mile Island (1979), de Tchernobyl<sup>125</sup> (1986), et des incidents moins graves, assure la résistance aux diverses adversités, naturelles ou malveillantes, etc. en prévoyant des dispositifs de secours du réacteur nucléaire, pour des causes dont on ne voit pas actuellement comment elles arriveraient ;
- 3 : augmente nettement les performances** des centrales électronucléaires à eau, par exemple en allongeant la durée de vie de la centrale de 30 ans à 60 ans, en tirant plus d'énergie de chaque élément combustible irradié – **taux de combustion** passant d'environ 45 GW thermique. jour/tonnes Métal Lourd Initial irradié à environ 60 GW thermique. jour/tonne.MLI, grâce à des matériaux plus adaptés aux hautes irradiations et hautes températures régnant dans toutes les installations nucléaires concernées par le cycle de combustible etc.

Les centrales électronucléaires qui fabriqueraient autant de matières fissiles (sous forme de plutonium) qu'elles en consomment (sous forme d'uranium et d'une partie du plutonium cité ci-dessus), ou même plus (dites surgénérateurs ou « breeder » ou Réacteurs à Neutrons Rapide – RNR), sont appelées la **quatrième génération**. Parmi les protagonistes les plus actifs de la quatrième génération, citons l'association internationale dite « GENÉration IV International Forum : GIF », la Russie, l'Inde, la Chine, le « Japan Nuclear Cycle Development institute », le Korean « Institute » et le CEA en France, qui a été

<sup>123</sup> Parmi les vestiges du passé, un aspect commun (1) des installations de production de matières fissiles ou fusibles ; et (2) le nucléaire de production d'électricité, est la nécessité de **retour après l'activité nucléaire à un terrain libre** d'emploi, et notamment, la **maitrise de la radioactivité de ce terrain**. Pour les premiers, outre le démantèlement des bâtiments, et des surfaces du sol, il a pu être nécessaire, comme par exemple au centre de Hanford – Hanford Waste Treatment Plant – WTP, dans l'état de Washington des Etats-Unis, de traiter les eaux souterraines. Une installation supplémentaire, capable de séparer le **chrome**, avant de rejeter les eaux d'épuration dans la rivière, vient d'être mise en exploitation. Le traitement de ces eaux devrait être terminé avant la fin de 2012. Un autre exemple, est celui des réacteurs (nommés « P and R reactors ») de production de matériaux au « Savannah River Site » ; une étape fondamentale du nettoyage vient d'être franchie (« milestone 2011 ») Il s'agit là d' établissements de production de matériaux du DOE (Department of Energy des Etats Unis), construits et exploités dans la hâte des années de guerre, puis de guerre froide, qui pourrait sembler ne pas concerner les installations du nucléaire civil. Toutefois, si il s'agit des suites d'un accident (notamment pour la centrale de Fukushima Dai-Ichi), on serait dans le même contexte de dispersion de produits radioactifs, pour tenter de nettoyer les sols, les végétaux et les eaux souterraines éventuellement touchées par de la radioactivité. Cela pourrait impliquer plusieurs années de travail et la recherche d'un site pour stocker les détritiques enlevés. ("Department of Energy; office of environmental management; Federal project direction for soil and ground water".)

<sup>124</sup> Les RNR nécessitent de plus hautes densités massiques de corps fissile par unité de volume du cœur (environ 15 à 20% du métal lourd initial) afin d'absorber les neutrons avant que ceux-ci aient subi trop de collisions. Cela entraîne de plus hautes densités de puissance dans le cœur (un facteur 3 à 10). Cela entraîne la nécessité d'un refroidissement par un fluide de plus haute capacité thermique et de plus haute température d'ébullition que l'eau. La solution explorée dans la plupart des pays nucléaires a été le sodium liquide ou un composé de ce sodium ou encore un eutectique du plomb.

<sup>125</sup> Une référence fiable, relative à l'accident de Tchernobyl, est celle de l'AIEA : [www.iaea.org/Publications/Booklets/Chernobyl/chernobyl.pdf](http://www.iaea.org/Publications/Booklets/Chernobyl/chernobyl.pdf).

longtemps le plus avancé avec RAPSODIE, PHENIX et SUPERPHENIX. Une bonne référence sur la physique des réacteurs des centrales de deuxième et troisième génération, donc fonctionnant actuellement en France et dans la majorité des centrales électriques actuelles, est la réf. [90] dont le Chapitre 15 traite de la **physique du cycle des combustibles**. Pour la quatrième génération en France, voir la réf. [32].

## A.2. Le vocabulaire du cycle du combustible

On appelle **cycle du combustible d'un parc de centrales électronucléaires** (analogue à celui de la France) la suite des opérations suivantes, (avec leurs équipements et leurs installations) :

- Extraction du minerai d'uranium dans une mine d'uranium; séparation mécanique, physico-chimique d'un composé d'uranium, fabrication de l'oxyde  $U_3O_8$  ;
- Fabrication de fluorure d'uranium, qui sous forme gazeuse,<sup>126</sup> sera enrichi en son isotope 235 ;
- Une usine dédiée à l'enrichissement de l'uranium, fera passer de la concentration naturelle en uranium 235, de 0,720 % à **3,6–4 %** ;
  - Cette opération rejette de l'uranium (dit appauvri), toujours sous la forme d'hexafluorure d'uranium, très réactif et corrosif. Celui-ci contient environ 0,3 % de l'isotope 235. Son flux de masse d'uranium par unité de temps est considérable : environ 87 % de l'uranium naturel entrant dans l'usine d'enrichissement. L'entreposage de cet uranium, sous forme d'hexafluorure d'uranium représente actuellement (pour la France) environ 200 000 tonnes<sup>127</sup> d'uranium ;
  - Une usine de fabrication de pastilles (diamètre de 2,2 mm ; épaisseur de 0,57 mm) d'uranium sous forme d'oxydes d'uranium, sous la composition  $UO_2$ . La longueur de la colonne cylindrique de ces pastilles de combustible est de 3,65 m pour les 900 MWé et de 4,2 m pour les REP 1300 MW2 ;
  - Fabrication de cylindres métalliques creux (diamètre de 9,5 mm, épaisseur de cette « gaine » de 0,57 mm ; longueur de 3,85 mètres dans les REP 900 MWé et de 4,48 m dans les REP 1350 MWé) contenant ces pastilles ;
  - Fabrication d'un assemblage dit élément combustible (nommés **UOX**<sup>128</sup>) regroupant les tubes ci-dessus et des structures métalliques les maintenant ensemble, permettant leur irradiation par des neutrons ;
  - Leur refroidissement par un fluide – de l'eau dans la plupart des centrales actuelles – dans un réacteur nucléaire ;
  - Extraction des éléments combustibles quand ils sont entièrement « usés », c'est-à-dire qu'ils ont atteint la **limite de bonne tenue de leurs matériaux**, tant vis à vis des dégâts de l'irradiation, que de celui des températures et des contraintes mécaniques ;
  - Refroidissement de ces éléments combustibles dans une piscine pendant un délai se comptant en années ;
  - Manutentions et transports éventuels de ces éléments combustibles dans une usine de séparation mécanique et chimique – dite de retraitement – pour en extraire le plutonium, d'une part, les produits de fission d'autre part (actuellement regroupés avec des transuraniens dits mineurs, tels que le neptunium, l'américium et le curium voir par exemple, <http://www.laradioactivite.com/fr/site/pages/lesactinides.html>) ;
  - Parmi les divers corps séparés dans l'usine, les produits de fission et les actinides mineurs sont vitrifiés dans des cylindres de verre par un procédé mis au point en France et utilisé dans le monde entier ;
  - Ces cylindres contenant environ 85–90 % de verre, sont entreposés dans l'usine de retraitement (où on en a extrait le combustible usé) et refroidis en permanence par une circulation d'air ;
  - L'uranium est également séparé dans l'usine de retraitement. Il est nommé « uranium de retraitement » contenant environ 1 % d' $U^{235}$ , et éventuellement les autres transuraniens, etc. ;
  - Les composés chimiques du **plutonium**. (environ 53 % de l'isotope 239, 24 % de l'isotope 240, 12 % de l'isotope 241, 7 % de l'isotope 242, etc.) sont séparés,<sup>129</sup> mis sous forme d'oxydes de plutonium et envoyés à l'Usine de fabrication

<sup>126</sup> A la température et la pression ambiante, l'hexafluorure d'uranium est un solide sous forme de cristaux orthorhombiques. Sous la forme gazeuse, les molécules  $UF_6$  sont sans association chimique (S. Villani : Uranium enrichment ; Springer-Verlag ; Daniel Massignon : Gaseous diffusion ; pp. 123–121 et figure 3-25). La température à laquelle le  $UF_6$  devient, par sublimation, sous forme gazeuse est  $56,5^\circ C$  à la pression atmosphérique. Le point triple est à  $64,05^\circ C$ , 1,50 atmosphère. Les caractéristiques du point nominal de l' $UF_6$  dans l'usine d'enrichissement, sont légèrement plus élevées. La densité massique du gaz, à  $65^\circ C$ , est  $4,87\text{ g/cm}^3$ .

<sup>127</sup> Les bases de calcul de ce nombre de 200 000 tonnes sont explicitées dans la réf. [22]. En ce qui concerne les U.S.A, les organismes américains annoncent qu'environ 500 000 tonnes d'uranium appauvri sous forme d'hexafluorure d'uranium (masse totale = 740 000 tonnes), entreposées à côté des usines d'enrichissement d'Oak Ridge, de Paducah et de Portsmouth, viennent d'être emmagasinées dans environ 63 000 réservoirs, conçus à cet usage et dont les photographies sont publiées par le DOE (Department of Energy). Une usine de traitement de ces résidus vient d'être mise en service. De plus, le nettoyage des eaux souterraines contaminées tant par des éléments radioactifs que chimiques sont en cours. ("Paducah site focuses on Ground water remediation : Paducah is the site of the nation's only active uranium enrichment plant. After closure, ultimate clean up will generate an estimated 2 to 3 million cubic-meters of waste. Most of the waste will be hazardous, requiring either a new on-site engineered disposal cell or off-site disposal." (DOE : OEM, Vol. 3, issue 15, November 2011)).

<sup>128</sup> L'enrichissement de l'uranium des UOX destinés aux plus anciens réacteurs, ayant une puissance de 900 MWé, est de 3,7 % en  $U^{235}$ . Pour les réacteurs plus récents, à 1300 MWé, c'est 3,6 %.

<sup>129</sup> A la sortie de l'irradiation des UOX dans le réacteur considéré, il reste environ 1 % de plutonium par rapport au métal lourd initial de ce combustible UOX. C'est ce 1 % des éléments combustibles envoyés par le producteur d'électricité qui est séparé à l'usine de retraitement.

- des assemblages combustibles dits MOX, dans l'Usine MELOX du centre de Marcoule. Outre l'oxyde de plutonium, on y fabrique un oxyde d'uranium, appauvri ou non, et on mélange<sup>130</sup> ces oxydes ;
- On y fabrique des pastilles contenant ces deux oxydes, mélangés suivant un processus rigoureux, qui a été délicat à mettre au point. Ces pastilles contiennent environ 5 à 8% de plutonium. (En plaçant cet élément combustible, on évitera ainsi d'acheter l'uranium enrichi pour cet élément.) De plus, au lieu d'avoir à entreposer, puis stocker 5 à 8 UOX irradiés pendant 4 décennies et de les enfouir, ensemble, on entrepose 1 élément combustible MOX, puis on le stocke définitivement. Toute la justification (du point de vue cycle de combustible) de ce procédé retraitement-MOX tient en ce chiffre de 8. Le handicap est que la durée de refroidissement passe de 40 ans pour les UOX usés à 60–80 ans pour les MOX usés) ;
  - On fabrique alors des « crayons » qu'on assemble, toujours à l'Usine MELOX, en éléments combustibles dits **Mixtes** (d'où le nom de **MOX**<sup>131</sup>) ;
  - Ces assemblages MOX sont transportés sur les sites des centrales électronucléaires autorisées à les irradier. L'exploitant charge annuellement un tiers (à un quart) de son cœur<sup>132</sup> de MOX.<sup>133</sup> Cette irradiation se fait par déchargement tous les trois (à quatre) ans d'un tiers du contenu du cœur en MOX ;
  - Le refroidissement des éléments combustibles usés, cités ci-dessus, UOX ou MOX, est nécessaire pendant des durées de 5 à 80 ans, suivant la quantité de transuraniens qu'ils contiennent ;
  - Ce refroidissement est d'abord effectué dans des piscines de centrales électronucléaires ;
  - Ensuite, éventuellement dans des entreposage, sous leur formes initiales ou bien placés dans des fûts de refroidissement refroidis par des gaz neutres ; stockage dit définitif ou non suivant la législation ;
  - Comme dans toutes les industries, les ménages, l'agriculture, etc., il y a des déchets à chaque étape du cycle, déchets gazeux, liquides, boues, solides. Les détails décrivant ces déchets et leurs productions annuelles avec leurs radioactivités sont donnés dans R. Dautray [1] : L'énergie nucléaire civile dans le cadre temporel du changement climatique ; documents 5 à 45, pp. 206–230 et la deuxième partie dans le texte, pp. 15–98 ;
  - Les opérations concourant au cycle des combustibles esquissés ci-dessus impliquent de nombreuses manutentions et transports (tous deux dans des canaux d'eau, afin que le refroidissement ne cesse jamais, ni la radioprotection du personnel concerné) de corps radioactifs, dégageant de la chaleur par leurs désintégrations radioactives et irradiant des rayons gammas, des neutrons, etc.

L'accroissement des capacités de puissance en cours, en particulier en Asie, en Amérique du Sud, en Russie, dit « renaissance du nucléaire » impliquerait une augmentation de ces manutentions et transports, dans beaucoup de parties du monde.

### A.3. Un exemple de degrés de liberté pour faire évoluer les marges de sécurité des installations nucléaires : agir sur le bilan neutronique du cœur d'un réacteur nucléaire

On a vu que la gaine du combustible était l'une des barrières contenant les produits de fission, les transuraniens, les composés volatils, les gaz, issus des réactions nucléaires (de fission, de capture, de désintégrations, etc.). Ces réactions étaient à haute température, haute densité de puissance,<sup>134</sup> d'énergie, haute pression, hautes irradiations (Neutrons, rayons  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , énergies cinétiques des produits de fission, etc.).

Nous avons indiqué que pour ne pas absorber trop de neutrons, on choisissait tel alliage à base de zirconium et telle faible épaisseur de cette gaine (par exemple, 0,57 millimètres [36], pour les REP anciens de 900 MWé et aussi pour les REP plus récents de 1350 MWé (pour des raisons de fabrications des crayons de combustibles). Si on avait plus de neutrons libres d'emploi par fission, on pourrait tolérer une plus grande absorption dans la gaine. On l'utiliserait, soit pour augmenter l'épaisseur, soit pour adopter comme matériau de la gaine, un acier inoxydable de grande tenue à toutes les conditions thermodynamique et d'irradiation vues ci-dessus. C'est ce qui a été fait au Royaume Uni pour la filière des « Advanced Graphite Reactor-AGR » – en augmentant leur taux d'enrichissement en U235. Pour savoir de quelle manière, on peut augmenter le

<sup>130</sup> Ce « mélange » d'oxyde de plutonium et d'oxyde d'uranium, devra fonctionner à des températures supérieures à 1000–2000 °C, chaque atome étant irradié par toutes sortes de rayonnement, de produits de fission à haute énergie cinétique, de gaz sous pression, etc. La mise au point industrielle de ce procédé de mélange a demandé les efforts de plusieurs pays. Les Usines du Royaume Uni, ne sont pas parvenues à un stade industriel fiable et ont dû fermer leur usine, après des déboires pendant l'exploitation des MOX.

<sup>131</sup> La teneur en plutonium des MOX, rapport de la masse de plutonium (tous isotopes inclus) à la masse d'uranium utilisée (uranium appauvri par exemple), est de 5,3%. Ce rapport, comparé à celui de l'U235 (3,5–3,7%), dans les UOX peut surprendre. Toutefois, cet élément chimique ne contient qu'environ 37% de l'isotope 239. De plus, les isotopes pairs de cet élément chimique capturent des neutrons. (Voir R. Dautray : [1, pp. 109–110].)

<sup>132</sup> Les cœurs des REP de 900 MWé ont une **économie de neutrons** qui leur permet d'accueillir une partie de leur chargement en MOX. Toutefois, **l'économie des neutrons** des REP 1350 MWé, ne leur permet pas d'accueillir des MOX. L'EPR a été conçu pour que son **économie des neutrons** accepte tout chargement en MOX, y compris, le chargement complet.

<sup>133</sup> La durée du cycle des éléments combustibles (depuis le chargement des UOX en REP jusqu'au chargement des MOX en réacteur) est de l'ordre de 8 à 12 ans. Les décisions scientifiques et techniques concernant l'emploi de MOX dans les réacteurs doivent donc être préparées et prises environ une dizaine d'années à l'avance.

<sup>134</sup> La densité de puissance thermique dans le cœur d'un REP ou d'un réacteur de la troisième génération, comme EPR, est d'environ 100 à 170 kWatt/dm<sup>3</sup>. Pour évacuer cette puissance, ce cœur est parcouru par de l'eau avec une vitesse d'environ 4 à 5 mètres/seconde. La **traversée du cœur par l'eau de refroidissement** se fait donc en un **peut moins d'une seconde**. Celle-ci est donc une constante de durée des phénomènes thermodynamiques dans le cœur.

nombre (libre d'emploi) de neutrons par fission, il faut effectuer des bilans neutroniques par fission. Cela a été expliqué dans [1], dans le §4.1, son encadré III (pp. 75–79) et les figures des documents 122, 123, pp. 294–295 pour un REP<sup>135</sup>. L'ensemble des phénomènes ainsi quantifié s'appelle **l'économie des neutrons** de tel REP, de tel RNR, etc.

## Annexe B. Quelques données concernant le cycle du combustible en France

Chaque année, l'exploitant (EDF) des centrales électronucléaires de France introduit dans ses centrales électronucléaires environ 1000 tonnes d'uranium enrichi, sous forme de pastilles d'UO<sub>2</sub>. Celles-ci sont des assemblages de 264 crayons, dans un réseau de 17 × 17 places, avec un pas de 12,6 mm. Les assemblages des REP de 900 MWé pèsent chacun 649 kg et ceux des REP, de 1300 MWé, chacun 760 kg. Les réacteurs REP de 900 MWé comportent 157 assemblages et les réacteurs de 1300 MWé, 193 assemblages. La fabrication des assemblages dont la gaine (en zircalloy4, nuance d'un alliage de Zirconium, contenant de l'étain) entourant les matières radioactives pendant l'irradiation, est gage de la protection du personnel et des populations voisines de leur protection. Les produits de fission **gazeux** les plus abondants en masse y sont les isotopes 131 et 132 du xénon (respectivement, 2,9% et 4,4% des produits de fission). D'autres gaz produits par les fissions, sont les isotopes du krypton, ceux des matières volatiles comme l'iode, le césium, etc. Tous ces corps créent une haute pression que la gaine irradiée et chaude doit supporter en toutes circonstances. De ces 1000 tonnes de métal lourd initial, le producteur Français d'électricité sort, après irradiation, 50 tonnes de produits de fission,<sup>136</sup> 12 tonnes d'isotopes du plutonium et environ 1 tonne de d'isotopes des transuraniens. De tous ces chiffres, on peut observer que la **manutention de ces assemblages combustibles** pose problème, quand, au terme de leur irradiation, on en remplace à chaque recharge un quart ou un tiers par des assemblages neufs, qu'il s'agisse de l'UOX ou du MOX. Il faut alors transporter ces assemblages irradiés avec leur puissance résiduelle qu'il faut continuer à évacuer, et leur radioactivité, qui oblige à une continuelle radioprotection. Celle-ci est assurée par des canaux d'eau et la piscine profonde où ils sont irradiés. Ceci nécessite une attention sans faille, pendant des décennies, ou des années, si on les place dans un fût (« canister » en langue anglaise) refroidi par un gaz, à sec. C'est donc un personnel d'élite qui assure tous ces travaux, sans relâche d'attention.

Retenons, à **l'échelle du Monde**, d'autres nombres simples. Chaque GigaWatt installé et en fonction, brûle environ 1 tonne de matières fissiles par an, dont un peu moins d'un tiers s'est formé in situ, Plutonium issu de l'absorption d'un neutron par un noyau d'isotope 238 de l'uranium. Ce GigaWatt produit environ 1 tonne de produit de fission, et 200 kg de plutonium. Pour tout cela, il faudra réaliser les conditions matérielles d'un sort définitif. Cela inclut un site d'enfouissement profond, des conteneurs et une matrice d'immobilisation pour les corps radioactifs, un traitement des isotopes du plutonium (une réponse dans ce monde – Russie, Chine, Inde, etc. – est actuellement le RNR avec ses cycles de combustibles loïsibles).

La séparation mécanique et chimique des éléments chimiques cités ci-dessus, (effectuée actuellement pour ce qui de la France à l'Usine de La Manche, au Japon à l'Usine de Rokkasho-Mura, en Russie aux usines de Mayak et de Krasnoyarsk, etc.) utilise une précipitation à température ordinaire. Pour accélérer la réaction, les fluides sont un peu chauffés. Grâce à ce procédé aqueux, inauguré par Glenn Seaborg à l'Université de Chicago pendant la dernière guerre [103] les opérations n'ont pas, à notre connaissance, créé d'accidents graves en France (IRSN), mais des incidents matériels, aboutissant parfois à des crises technologiques, ont eu lieu à l'Usine dit THORP de Sellafield, auprès de la mer d'Irlande, en Grande Bretagne. De plus, la diminution de clientèle a amené l'entreprise à fermer cette Usine de séparation chimique de Sellafield.

## Annexe C. Puissance résiduelle des combustibles

Le refroidissement des éléments combustibles irradiés sortis d'une centrale électronucléaire, la puissance résiduelle et la radioactivité de ces éléments sont des questions que les professionnels connaissent bien, et que la crise de Fukushima a

<sup>135</sup> On lit sur le document 123 de [1] que pour un neutron né d'une fission produite dans un REP, il y a 38,1% de ce neutron qui va donner des fissions (24,1% dans l'U235, 2,9% dans l'U238, 12% dans le plutonium 239 formé in situ, 1,8% dans le plutonium 241 formé in situ). Les captures fertiles (c'est-à-dire produisant un noyau fissile) seront de 28,8% (dont 24,8% dans l'U238 et 4% dans le Pu240 formé in situ). Les captures stériles (dont celles dans la gaine citée ci-dessus) seront de 31,1%. En diminuant ces captures stériles dans les autres structures, on crée un surplus de neutrons par fission, utilisable pour améliorer le fonctionnement du réacteur et de son cycle de combustible. C'est un puissant degré de liberté pour faire évoluer les performances des cycles de combustibles des installations électronucléaires. Ainsi dans [93], le nombre de neutrons en surplus, par fission, dans l'ensemble du parc électronucléaire actuel, donc en REP chargé en Uranium enrichi en l'isotope U235, ce surplus de neutrons par fission dans le cœur de ces REP, est estimé à environ 0,32. Si un éventuel futur parc électronucléaire (ou sous-parc) était formé de RNR utilisant comme matière fissile le plutonium, le **surplus de neutrons par fission** serait de 1,16 ([1], p. 76). Il est envisagé par certains protagonistes d'utiliser ce surplus du nombre de neutrons par fission, afin de détruire, soit des transuraniens, soit des produits de fission à longue demi-vie. Ce surplus peut aussi être utilisé pour d'autres objectifs : Faire de la surgénération de matière fissile, améliorer les structures. Le choix parmi toutes ces possibilités, découle des critères de sécurité à court terme, moyen terme ou long terme, tant pour les réacteurs nucléaires que pour les cycles de combustibles. Ceci doit être décidé par les Français. Il faut donc qu'on leur présente les scénarios qui sont possibles pour évaluer les détriments liés à la radioactivité sur les humains et aussi l'environnement. Ils peuvent en vouloir d'autres.

<sup>136</sup> Pour comprendre le potentiel de réactions chimiques de ces produits de fission, après la fin d'une irradiation des combustibles, donnons par ordre **de masses décroissantes**, pour 1 tonne de d'uranium initialement enrichi à 3,25%, ayant été irradié de façon à produire 33 MW. jour/tonne, on a 0,1 seconde après l'arrêt du réacteur (et donc les réactions en chaîne ayant cessé), le bilan suivant : xénon : 5,37 kg; neodyme : 3,59 kg; zirconium : 3,54 kg; molybdène : 3,2 kg; **césium** : 2,75 kg; cérium : 2,74 kg; ruthénium : 2,49 kg; **iode** : 0,224 kg, etc. En tout, cela fait 33,9 kg de produits de fission par tonne de métal lourd initial. Pour un chargement annuel de 1200 tonnes, on a donc, pour le parc français (qui consomme chaque année une cinquantaine de tonnes d'uranium), 40,6 tonnes de produits de fission, dont 3,3 tonnes de césium/an et 0,268 kg d'iode [1, pp. 216, 84–88–89]. Il faut ajouter à ces fissions, les corps (dont le plutonium) produits par les absorptions successives de neutrons sur l'uranium 238. Ce sont les propriétés particulières, physiques, chimiques, physico chimiques et biologiques (voir Annexe E) qui font de ces deux corps (Cs et I), les plus dangereux.

remis en plein débat public. Un de ces débats récents, à l'American Physical Society, a eu lieu autour de Raymond L. Orbach, ancien Secrétaire d'Etat Science du DOE. L'assertion de R.L. Orbach était qu'au bout d'une durée à fixer par les phénomènes physiques, cycle du combustible complet compris, les éléments combustibles usés, doivent être sortis de la piscine de la centrale nucléaire et entreposés autre part, avec de plus, une protection propre, pour refroidissement pendant les trois à quatre décennies nécessaires, comme un « cask » à refroidissement par air. C'est ce qui est fait en Suède où tous les éléments combustibles sont enlevés dès que possible des centrales et tous amenés dans une piscine souterraine creusée dans une couche profonde du granit, sous la mer Baltique. C'est partiellement fait en France puisque le retraitement à l'usine de La Manche permet de séparer les produits de fission et les transuraniens, de les vitrifier et de les laisser refroidir sur place. Il faudra 3 à 4 décennies pour qu'ils puissent être mis en stockage définitif, c'est-à-dire sans refroidissement autre que la conduction thermique. Resterait à traiter les cas des autres éléments combustibles irradiés situés dans les piscines des exploitants. Les isotopes du plutonium contenus dans les MOX constituent des ressources potentielles en combustibles pour l'énergie nucléaires qui, pour une masse donnée d'Uranium naturel, multiplieraient par un facteur 80 l'énergie obtenue, par rapport à l'usage qui en est fait actuellement.. Avec l'uranium appauvri existant sur notre territoire, rejets entreposés des usines d'enrichissement de l'uranium, les producteurs d'électricité de la France, avec un procédé technologique industriel adéquat, disposeraient d'un gisement disponible pour des nombreux siècles. En effet, pour consommer le plutonium de ces MOX irradiés qui s'accumule dans les piscines (en France, en Allemagne, en Belgique, au Japon, etc.), il existe la solution poursuivie par les protagonistes français depuis les années 1960, de les utiliser dans des surgénérateurs industriels.

#### Annexe D. Compétition entre désintégration et capture

Dans un réacteur nucléaire en fonctionnement, il y a, pour chacun des noyaux radioactifs créés tant par les fissions que par les captures de neutrons, une **compétition entre deux réactions nucléaires, l'une étant la désintégration<sup>137</sup> de ce noyau par radioactivité et l'autre l'absorption d'un neutron**. Cela est expliqué dans la réf. [1] au §4.2. Pour ceux des noyaux qui sont des **produits de fission**, la **demi-vie par absorption d'un neutron** (ce que certains appellent la transmutation des nucléides nuisibles) est bien supérieure à la demi-vie par désintégration. Voici quelques exemples de **demi-vies (en années) par absorption de neutrons dans un REP** (le flux de neutron  $\gamma$  est supposé d'environ  $3 \times 10^{14}$  neutrons/cm<sup>2</sup> s) : <sup>79</sup>Se (sélénium) : 18 ans ; <sup>93</sup>Zr (zirconium) : 78 ans ; <sup>99</sup>Tc (technétium) : 13 ans ; <sup>107</sup>Pd (palladium) : 26 ans ; <sup>126</sup>Sn (étain) : 2800 ans ; <sup>129</sup>I (iode) : 30 ans ; <sup>135</sup>Cs (césium) : 30 ans ; <sup>137</sup>Cs : 3000 ans. Ces diverses durées sont de plus, bien supérieures à la durée d'une irradiation en réacteur (par exemple, 4 ans, avec un rechargement par quart du contenu du cœur, dans le cas des UOX). La transmutation n'est pas envisageable dans un **REP ou dans un quelconque réacteur à eau**.

Pour les **réacteurs à neutrons rapides**, le flux de neutrons d'énergie cinétique de l'ordre de 0,1–0,3 MeV est d'environ  $10^{15}$  neutrons/cm<sup>2</sup> s ; les mêmes produits de fission que ci-dessus y ont des demies vie par absorption de neutrons, de respectivement : <sup>79</sup>Se : 59 ans ; <sup>93</sup>Zr : 48 ans ; <sup>99</sup>Tc : 8 ans ; <sup>107</sup>Pd : 5 ans ; <sup>126</sup>Sn : 740 ans ; <sup>129</sup>I : 30 ans (vie moyenne par désintégration  $\beta = 1,57 \times 10^7$  ans) ; <sup>135</sup>Cs : 25 ans ; <sup>137</sup>Cs : 240 ans (CEA/Cadarache) (H. Bailly, D. Ménessier, C. Prunier : Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides ; conception et comportement ; collection CEA ; série synthèses ; Eyrolles ; 1996). Ces isotopes des éléments chimiques sont cités ici parce que souvent désignés comme pouvant **migrer à partir d'éventuels sites souterrain de stockage** définitif géologiques souterrains. (R. Daustray : [1] Documents 69, 70, 71, 72, 73, 74, 75, pp. 256–262).

Les nucléides responsables de la puissance résiduelle sont différents, suivant la durée écoulée depuis que l'exploitant les a sortis du cœur du réacteur. Par exemple, **au bout de 5 ans de refroidissement après sortie du réacteur**, le radionucléide responsable de la moitié de la puissance résiduelle, est le praseodyme Pr144 – descendant du produit de fission cerium 144 de demi-vie  $\beta = 284,8$  jours. La demi-vie  $\beta$  du Pm144 est de 17,4 minutes avec l'émission d'un  $\gamma$  de forte énergie. La proportion de ce produit de fission est de 5,6% par rapport à l'ensemble des produits de fission. C'est donc **la désintégration**

<sup>137</sup> La durée d'une telle **désintégration** est une « variable aléatoire ». La demi-vie, citée tout au long de ce texte, en est la « valeur probable ».

(1) Tous les **produits de fission ne peuvent jouer** un rôle dans l'usage par les hommes, que si leur demi-vie (toujours  $\beta$ ) est d'un ordre de grandeur analogue à celui des technologies des humains (des heures aux siècles).

(2) Les phénomènes d'interactions nucléaires (dites interactions « fortes »), ont des durées de l'ordre de grandeur de leur dimension ( $10^{-13}$  cm) divisée par la vitesse de la lumière ( $3 \times 10^{10}$  cm/s), soit de l'ordre de  $10^{-21}$  à  $10^{-22}$  s.

(3) Toutefois, **toutes les désintégrations intervenant dans les produits de fission et les matériaux de structures** des combustibles, sont des **désintégrations dites  $\beta$** , qui résultent de l'interaction faible, donc à longue durée (par rapport à la durée de l'interaction forte), soit depuis les secondes jusqu'aux siècles.

(4) Pour les **désintégrations  $\alpha$  des transuraniens**, par exemple, la réaction nucléaire  $U238 \rightarrow$  thorium 234 + hélium 4 (noté  $\alpha$ ), la probabilité de passer à travers la barrière électrique du noyau (« barrière de pénétration »), afin d'en sortir, est d'environ  $2 \times 10^{-35}$ . En langage simple, permettons nous de dire que pour parvenir à sortir du noyau de l'atome, une particule  $\alpha$  doit s'y présenter de l'ordre de  $10^{35}$  fois avant d'aboutir. La physique quantique fait que cette probabilité est différente de zéro ; C'est ce qu'on appelle l'effet tunnel, depuis Georges Gamow et l'expérience sur la pénétration d'un proton dans un noyau, qu'il avait suscitée chez Rutherford, alors au « Cavendish Laboratory de Cambridge ». Mais, les vibrations de cet  $\alpha$  dans le noyau se font avec les périodes citées ci-dessus d'environ  $10^{-21}$  s. Il en résulte que la valeur probable de la variable « aléatoire durée d'attente de l'émission d'un  $\alpha$  par le noyau d'un atome d'uranium 238 » est le quotient de la dernière quantité par la première, soit environ  $1,4 \times 10^{17}$  secondes, soit environ  $5 \times 10^9$  années (en fait,  $4,468 \times 10^9$  années).

(5) Dans les deux cas, la durée s'écoulant depuis que l'on considère un noyau jusqu'à sa désintégration ( $\alpha$  ou/et  $\beta$  ou autres) est une **variable aléatoire** à valeurs dans les nombres réels positifs. La **valeur probable de cette variable aléatoire** est ce que l'on appelle la **vie moyenne (rapport entre les deux durées : 0,693)** du noyau de l'atome. L'instant de départ du comptage du temps est indifférent, car la densité de probabilité d'une désintégration est constant au cours du temps : en un mot, les propriétés physiques du noyau de l'atome sont invariantes par translation dans le temps.

### **$\beta$ du cérium 144 qui commande l'intensité de la puissance résiduelle et la radioactivité du produit de fission de masse atomique 144 durant les premières années du refroidissement.**

Compte tenu des demies vie par capture d'un neutron citées plus haut, et avec les technologies actuelles, c'est-à-dire notamment les flux de neutrons accessibles –  $10^{14}$  à  $10^{15}$  neutrons/cm<sup>2</sup> s, – ce serait une puissance thermique dégagée dans le cœur du réacteur d'environ 150 à 800 kW/cm<sup>2</sup>, qu'il faudrait donc évacuer. C'est donc la thermique et l'extraction de chaleur qui limite la puissance thermique issue de la fission et non l'économie des neutrons. La transmutation n'est guère envisageable par irradiation en réacteur pour les produits de fission, avec les technologies actuelles.

Enfin, observons que les absorptions de neutrons, par exemple, ramenées à une fission de tel noyau d'atome, conduisent soit à une diminution du nombre de neutrons s'il s'agit d'une capture, soit à une augmentation s'il s'agit d'une fission, donc agissent sur l'économie des neutrons. Au contraire les désintégrations de noyaux n'agissent pas directement sur l'économie des neutrons (indirectement seulement, si le noyau fils, est plus ou moins absorbant). On peut agir sur le premier processus en augmentant ou diminuant le flux de neutrons (neutrons/cm<sup>2</sup> s). On peut, par exemple, utiliser les neutrons supplémentaires par fission pour augmenter le taux de combustion, donc les créations de transuraniens par fission. Pour commander la compétition entre les désintégrations de noyaux et les absorptions de neutrons, on peut augmenter ou diminuer le flux de neutrons. Mais on peut aussi modifier le spectre des énergies cinétiques des neutrons, par exemple augmenter la proportion des neutrons rapides. Le cas extrême est celui où ceux-ci deviennent les plus nombreux. C'est alors un réacteur à neutrons rapides surgénérateur.

**Cette compétition entre les désintégrations et les absorptions de neutrons est donc un degré de liberté supplémentaire pour optimiser le cycle du combustible en vertu de tel ou tel critère** (à établir par les citoyens, donc par leurs représentants élus à l'échelle nationale).

### **Annexe E. Césium et strontium**

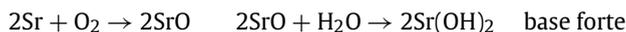
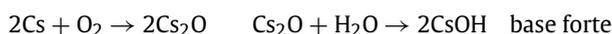
Pourquoi le césium et le strontium, tous deux produits de fission de périodes et de proportions voisines ont-ils un destin si différent quand on fait des mesures de radioactivité sur les sols<sup>138</sup> ?

Les composés du césium et ceux du strontium, ont des comportements nucléaires voisins. Ils sont tous deux volatils. En cas d'incident sur une installation nucléaire, ils sembleraient avoir des destins analogues. Quels sont les raisons chimiques et physico chimiques qui font que seul le césium constitue un danger persistant ? Sous quelles formes chimiques peuvent être relâchés césium et strontium ?

#### **Contribution demandée au Maurice Leroy, professeur à l'université de Strasbourg, ancien conseil pour la chimie auprès du Haut-Commissaire à l'énergie atomique**

Dans des conditions accidentelles, compte tenu des températures atteintes césium et strontium sont émis sous forme gazeuse immédiatement auprès du corium<sup>139</sup> car leurs températures de fusion et d'ébullition sont respectivement : césium : 28,4°C et 671°C ; strontium : 777°C et 1380°C.

Ces éléments sont extrêmement réactifs et se combinent immédiatement à l'oxygène puis à l'eau dans l'atmosphère :



Ce sont donc de très fines particules qui se forment dans l'atmosphère, elles seront entourées de molécules d'eau et elles pourront être transportées sous forme d'aérosols.

CsOH et Sr(OH)<sub>2</sub> sont des composés très réactifs et la plupart des oxydes rencontrés (dans l'atmosphère et/ou au sol) conduiront à une réaction fournissant un sel :

Comme par exemple l'oxyde de fer :



Déposées sur un sol argileux (hypothèse la plus probable à part les zones désertiques ou polaires) et quels que soient les composés formés, les comportements du césium et du strontium se différencient :

- **Le césium** interagit avec l'argile (aluminosilicate) et se fixe dans les cavités et les compartiments inter-foliaires des argiles. Il remplace le sodium ou le potassium et se trouve ainsi immobilisé dans les couches superficielles des sols arables. Les plantes (avec des différences sensibles selon leur nature) vont remobiliser ce césium (qui se comporte comme le potassium dont elles ont besoin) et après maturation puis dépérissement et pourrissement, restituer ce césium qui sera « recapté » par l'argile. Certaines études montrent que la teneur en matières

<sup>138</sup> Contribution de Maurice Leroy, demandée par l'un des auteurs.

<sup>139</sup> Corium : on appelle ainsi un mélange des corps du cœur du réacteur, en cas de fusion due à un accident.

organiques des argiles (complexe argilo-humique) joue un rôle dans la « complexation » du césium mais ce sont les propriétés des argiles qui gouvernent principalement les phénomènes. **Ces données expliquent que le césium reste présent longtemps dans les couches superficielles du sol et que les eaux de pluies et de ruissellement n'entraînent pas une migration rapide du césium vers les couches profondes où il ne serait plus accessible aux racines des plantes.**

- **Le strontium** est présent sous forme d'ion  $\text{Sr}^{2+}$  dont le comportement est analogue à celui du calcium  $\text{Ca}^{2+}$ . Le chlorure et le nitrate de strontium et d'une manière générale les sels, sauf le sulfate, sont très solubles et seront donc entraînés par les eaux de ruissellement. La rétention du strontium dans les feuillets de l'argile est moins marquée que celle du césium car il ne déplace que partiellement le calcium avec lequel il est en compétition (même charge ionique). Conséquence : le strontium est entraîné en couches plus profondes que le césium ce qui conduit à une dispersion-dilution très grande comparée à celle du césium qui on l'a vu est remobilisé par les plantes puis retenu dans les couches superficielles d'argile.

Ceci explique les nombreuses études dédiées au césium car il convient de plus de considérer le rôle des éléments en milieu biologique.

Sodium et potassium gouvernent les échanges de la cellule, lorsque le césium se substitue au potassium il est « thésaurisé » dans la cellule car sa demi-vie (un mois) est considérable comparée au potassium (13 h). Il s'ensuit que le  $^{137}\text{Cs}$  présente une rétention cellulaire importante et peut donc irradier la cellule de manière significative.

## Références

- [1] R. Dautray, L'énergie nucléaire civile dans le cadre temporel du changement climatique, Rapport à l'Académie des Sciences, TEC/DOC, Lavoisier, décembre 2001.
- [2] Eugene Wigner, Alvin Weinberg, *The Physical Theory of Neutron CHAIN Reactors*, University of Chicago Press, 1958.
- [3] M. Elimelech, et al., The future of sea water desalination: Energy, technology and the environment, *Science* 333 (5 August 2011) 712–717, and online supplement.
- [4] R. Dautray, Quelles énergies pour demain ?, troisième partie, Odile Jacob, 2004 (chapitre 4).
- [5] R. Dautray, Jacques Friedel, Surgénérateurs : l'état des matériaux aux hautes irradiations, hautes températures, hautes puissances locales et températures, leurs gradients et propriétés mécaniques adaptées aux contraintes qui en résultent, *C. R. Méc.* 338 (2010) 649–655.
- [6] R. Dautray, The long term future for civilian nuclear power generation in France: the case for breeder reactor, novelties and issues, *C. R. Méc.* 339 (2011) 369.
- [7] C. Perrow, *Normal Accidents, Living with High-risk Technologies*, Princeton University Press, 1984.
- [8] C. Perrow, *The Next Catastrophe, Reducing our Vulnerabilities to Natural, Industrial and Terrorist Disasters*, Princeton University Press, 2007.
- [9] F. Carré, Jean-Marie Delbecq, Overview of the French nuclear fuel cycle strategy and transition scenarios studies, in: *Global 2009*, Paris, September 6–11, 2009.
- [10] Massimo Salvatores, Sensibility of advanced reactor and fuel cycle performance parameters to nuclear data uncertainties, Nuclear Engineering Division, Argonne National Laboratory, 2005.
- [11] Paul Reuss, *Clefs pour la neutronique des réacteurs à eau*, INSTN (Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires), 1990.
- [12] Jean Bussac, Paul Reuss, *Traité de neutronique, physique et calcul des réacteurs nucléaires avec applications aux réacteurs à eau pressurisée et aux réacteurs à neutrons rapides*, Hermann, 1985.
- [13] N. Camarcat, et al., Industrial research for transmutation scenarios, *C. R. Méc.* 339 (2011) 209–218.
- [14] Charles D. Bowman, Once-through thermal-spectrum accelerator-driven light water reactor waste destruction without reprocessing: Special on accelerator applications, Los Alamos National Laboratory.
- [15] D. Tschamtké, et al., Ultrasonic investigations on copper canister welds in preparation for the storage of spent nuclear fuel in a deep repository, *ECNT*, 2006, We.4.6.2.
- [16] R. Mansuy, M. Yor, *Aspects of Brownian Motion*, Universitext, Springer Verlag, Berlin, 2008.
- [17] A.J. Majda, et al., *Information Theory and Stochastic for Multiscale non Linear Systems*, American Mathematical Society, 2005.
- [18] R. Dautray, P.-L. Lions, E. Pardoux, R. Sentis, G. Le Danois, M. Cessenat, *Méthodes probabilistes pour les équations de la physique*, Collection CEA, Editions Eyrolles, 1989.
- [19] R. Dautray, Sécurité et utilisation hostile du nucléaire civil, De la physique à la biologie, Rapport à l'Académie des Sciences, Paris, Editions TEC DOC, Lavoisier, juin 2007.
- [20] R. Kalman, Communications personnelles de tirés à part.
- [21] R. Guillaumont, Update on the Chemical Thermo Dynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium, Elsevier, 2003.
- [22] R. Dautray, J. Friedel, Energy: towards nuclear breeder installations before the end of the century? *C. R. Acad. Sci., Sér. IIb Méc.* 335 (2007) 61–74.
- [23] A. Goetzberger, C. Hebling, H.-W. Schock, Photovoltaic materials, history, status and outlook, *Mater. Sci. Eng. R Rep.* 40 (2003) 1–46.
- [24] R.-W. Miles, H.M. Hynes, I. Forbes, Photovoltaic solar cells: an overview of state of the art cell development and environmental issue, *Progr. Cryst. Growth* 51 (2005) 1–42.
- [25] N. Lewis, D. Nocera, Powering the planet, chemical challenges in solar energy, *PNAS* 10 (43) (24 October 2006) 15729–15735.
- [26] V. Artero, M. Fontecave, Future of sciences, science for the future, *CRAS Chim.* 14 (9) (2011) 799–810.
- [27] M. Ichimiya, The status of GENERation IV sodium cooled fast reactor technology development and its future project, *Energy Procedia* 7 (2011) 79–87.
- [28] L.K. Mansur, A.F. Rowcliffe, R.K. Nanstad, S.J. Zinkle, W.R. Corwin, R.E. Stoller, Materials needs for fusion, GENERation IV fission reactors and spallation neutron source, similarities and differences, *J. Nucl. Mat.* 329–333 (2004) 166–172.
- [29] S. Delpech, et al., Reactor physics and reprocessing scheme for innovative molten salt reactor system, *J. Fluorine Chem.* (2008), doi:10.1016/j.jfluchem.2008.07.009.
- [30] E. Merle-Lucotte, et al., Introduction to the Physics of Molten Salt Reactors, Springer, 2008, pp. 501–521.
- [31] R. Chéret, A. Delpuech, C. Michaud, La détonation des explosifs condensés, collection CEA, Série scientifique, tomes 1 et 2, Masson.
- [32] J. Bouchard, The fast breeder reactor, *At. Energy* 109 (5) (2011) 299–308, Springer.
- [33] C. Lemaignan, *Science des Matériaux pour le Nucléaire*, EDP Sciences, 2004.
- [34] W. Dietz, in: R.W. Cahn, P. Haasen, E.J. Kramer (Eds.), *Structural Materials in Materials Science and Technology, a Comprehensive Treatment*, vol. 10B, 1994, pp. 56–172.

- [35] A. Zaoui (Ed.), *Matériaux du Nucleaire, Rapport RST 5, Tec et Doc, Lavoisier, Paris, 2000.*
- [36] H. Bailly, D. Ménessier, C. Prunier, *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides, Collection CEA, Sér. Synth., Eyrolles, 1996.*
- [37] R.L. Klueh, D.S. Gelles, S. Jitsukawa, A. Kimura, G.R. Odette, B. Van Der Schaaf, M. Victoria, Ferritic Martensitic steels: overview of recent results, *J. Nucl. Mat.* 307–311 (2002) 455–465.
- [38] R.L. Klueh, A.T. Nelson, Ferritic Martensitic steels for next generation reactors, *J. Nucl. Mat.* 371 (2007) 37–52.
- [39] M. Rieth, J.L. Boutard, S.L. Dudarev, E. Materna-Morris, J. Major, Fe–Cr–V ferritic steels for possible nuclear applications, *J. Nucl. Mat.* 408 (2011) 140–146.
- [40] Q. Huang, C. Li, Y. Li, M. Chen, M. Zhang, L. Peng, Z. Zhu, Y. Song, S. Gao, Progress in development of China Low activation martensitic steel for fusion application, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 142–146.
- [41] M. Ando, M. Li, H. Tanigawa, M.L. Grossbeck, S. Kim, T. Sawai, K. Shiba, Y. Kohno, A. Kohyama, Creep behaviour of reduced activation ferritic/martensitic steels irradiated at 573 and 773 K up to 5 dpa, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 122–126.
- [42] P. Spating, R. Bonade, G.R. Odette, J.W. Rensmann, E.N. Campitelli, P. Mueller, Plastic flow properties and fracture toughness characterisation of unirradiated and irradiated tempered martensitic steels, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 527–538.
- [43] E. Galatnize, H.-C. Schneider, B. Daffener, J. Aktaa, Embrittlement behaviour of neutron irradiated RAFM steels, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 81–85.
- [44] E. Tanigawa, H. Sakasegawa, H. Ogiwara, H. Kishimoto, A. Kohyama, Radiation induced phase instability of precipitates in a reduced activation ferritic/martensitic steel, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 132–136.
- [45] J. Henry, L. Vincent, X. Averty, B. Marini, P. Jung, Effect of a high helium content on the flow and fracture properties of a 9Cr martensitic steel, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 411–416.
- [46] B. Fournier, M. Sauzay, C. Caës, M. Noblecourt, M. Mottot, An analysis of the hysteresis loop of a martensitic steel: Study of the influence of strain amplitude and temperature under pure fatigue loadings using an enhanced stress partitioning method, *Math. Sci. Eng. A* 437 (2006) 183–196.
- [47] B. Fournier, M. Sauzay, C. Caës, M. Noblecourt, M. Mottot, A. Pineau, An analysis of the hysteresis loop of a martensitic steel: Study of the influence of creep and stress relaxation holding time on cyclic behaviour, *Math. Sci. Eng. A* 437 (2006) 197–211.
- [48] T. Muroga, T. Nagasaka, K. Abe, V.M. Chernov, H. Matsui, D.L. Smith, Z.-Y. Xu, S.J. Zinkle, Vanadium alloys: overview and recent results, *J. Nucl. Mat.* 307–311 (2002) 547–554.
- [49] T. Muroga, J.M. Chen, V.M. Chernov, K. Fukumoto, D.T. Hoeltzer, R.J. Kurtz, T. Nagasaka, B.A. Pint, M. Satou, A. Suzuki, H. Watanabe, Review of advances in development of vanadium alloys, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 780–787.
- [50] Y. De Carlan, J.L. Bechade, P. Dubuisson, J.L. Seran, P. Billot, A. Bougaut, T. Cozzika, S. Doriot, D. Hamon, J. Henri, M. Ratti, N. Lochet, D. Nunes, P. Olier, T. Leblond, M.H. Mathon, CEA Developments of new ferritic ODS alloys for nuclear applications, *J. Nucl. Mat.* 386–388 (2009) 430–432.
- [51] P. Miao, G.R. Odette, T. Yamamoto, M. Alinger, D. Hoeltzer, D. Cragg, Effect of consolidation temperature, strength and microstructure on fracture toughness of nanostructured ferritic alloys, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 208–212.
- [52] R. Kasada, N. Toda, K. Yutani, H.S. Cho, H. Kishimoto, A. Kimura, Pre and post deformation microstructures of oxide dispersion strengthened ferritic steel, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 222–228.
- [53] A. Alamo, H. Regle, G. Pons, J.L. Bechade, Microstructure and texture of ODS ferritic alloys obtained by mechanical alloying, *Mat. Sci. Forum* 88–90 (1992) 183–190.
- [54] S. Ukai, T. Narita, A. Alamo, P. Parmentier, Tube manufacturing trials by different routes in 9Cr-ODS martensitic steel, *J. Nucl. Mat.* 329–333 (2004) 356–361.
- [55] C. Cayron, E. Rath, I. Chu, S. Launois, Microstructural evolution of  $Y_2O_3$  and  $Mg_2Al_2O_4$  ODS EUROFER steels during their elaboration by mechanical milling and hot isostatic pressing, *J. Nucl. Mat.* 335 (2004) 83–102.
- [56] D. Hoeltzer, J. Bentley, M. Sokolov, M. Miller, G. Odette, M. Alinger, Influence of particle dispersion on the high temperature strength of ferritic alloys, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 166–172.
- [57] A. Alamo, V. Lambard, X. Averty, M.H. Mathon, Assessment of ODS 14% Ferritic steel for high temperature applications, *J. Nucl. Mat.* 329–333 (2004) 333–337.
- [58] M. Tanelke, F. Abe, K. Sawada, Creep strengthening of steel at high temperatures using nano-sized carbonitrides dispersion, *Nature* 424 (2003) 294–296.
- [59] A. Alamo, J.L. Bertin, V.K. Shamardin, P. Wident, Mechanical properties of 9Cr martensitic steel and ODS FeCr alloys after neutron irradiation at 325 °C up to 42 DPA, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 54–59.
- [60] H.S. Cho, R. Kasada, A. Kimura, Effect of neutron irradiation on the tensile properties of high-Cr oxides dispersion strengthened ferritic steels, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 239–243.
- [61] P. Dubuisson, R. Schill, M.P. Hugon, I. Grislin, J.L. Seran, Behaviour of an oxide dispersion strengthened steel irradiated in Phenix, in: R. Nanstad, M. Hamilton, F. Gardner, A. Kumar (Eds.), *Effect of Radiation in Materials: 18th International Symposium, ASTM, 1999, ASTM STP 1325.*
- [62] M. Toloczko, D. Gelles, F. Garner, R.J. Kurtz, K. Abe, Irradiation creep and swelling of the oxide dispersion strengthened ferritic alloy MA957, *J. Nucl. Mat.* 329–333 (2004) 352–355.
- [63] I. Monnet, P. Dubuisson, Y. Serruys, M.O. Ruault, O. Kaitasov, B. Joffrey, Microstructural investigation of the stability under irradiation of oxide dispersion strengthened ferritic steels, *J. Nucl. Mat.* 335 (2004) 311–321.
- [64] A. Ramar, N. Baluc, R. Schaublin, Effect of irradiation on the microstructure and the mechanical properties of oxide dispersion strengthened low activation ferritic martensitic steel, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 217–221.
- [65] Y. Katoh, L.L. Snead, C.H. Henager, A. Hasegawa, A. Kohyama, B. Riccardi, H. Hegeman, Current status and critical issues for the development of SiC composites for fusion applications, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 659–671.
- [66] M. Ratti, *Comportement en fluage d'alliages ferritiques renforcés par une dispersion d'oxide nanométrique, Thèse Université de Grenoble, 2010.*
- [67] G. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science, Metals and Alloys, Springer, 2007.*
- [68] J. Garnier, C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, Irradiation creep of SA 304L and CW 316 stainless steels: mechanical behaviour and microstructural aspects I: Experimental results, *J. Nucl. Mater.* 413 (2) (2011) 63–69.
- [69] J. Garnier, C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, Irradiation creep of SA 304L and CW 316 stainless steels: mechanical behaviour and microstructural aspects II: Modelling via cluster dynamics simulations, *J. Nucl. Mater.* 413 (2) (2011) 70–75.
- [70] B. Van der Schaaf, E. Diegele, R. Laessner, A. Moeslang, Structural materials developments and databases, *Fusion Eng. Des.* 81 (2006) 893–900.
- [71] S. Maloy, B. Rogers, W. Ren, P. Rittenhouse, Status of materials handbooks for particle accelerator and nuclear reactor applications, *J. Nucl. Mat.* 377 (2008) 94–96.
- [72] S. Sharafat, G.R. Odette, J. Blanchard, Materials and design interface, *J. Nucl. Mat.* 386–388 (2009) 896–899.
- [73] G. Was, Materials degradation in fission reactors: lesson learned of relevance to fusion reactor systems, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 11–20.
- [74] S. Zinkle, N. Ghoniem, Prospects for accelerated development of high performance structural materials, *J. Nucl. Mat.* 417 (2011) 2–8.
- [75] C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, J.P. Massoud, A. Barbu, Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels: evolution of the microstructure, *J. Nucl. Mat.* 326 (2004) 19–29.
- [76] C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, J.P. Massoud, A. Barbu, Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels: irradiation induced hardening, *J. Nucl. Mat.* 326 (2004) 30–37.

- [77] M. Robinson, Basic physics of radiation damage production, *J. Nucl. Mat.* 216 (1994) 1–28.
- [78] N. Doan, F. Rossi, Computer simulations, *Solid State Phenom.* 30–31 (1993) 75–106.
- [79] G. Martin, P. Bellon, Driven alloys, *Solid State Phys.* 50 (1997) 189–331.
- [80] P. Bellon, G. Martin, Cooperative processes in alloys under irradiation, *Solid State Phenom.* 30 (31) (1993) 107–148.
- [81] M. Li, S. Zinkle, Fracture mechanisms in unirradiated and irradiated metals and alloys, *J. Nucl. Mat.* 362 (2007) 192–205.
- [82] P. Scott, A review of irradiation assisted stress corrosion cracking, *J. Nucl. Mat.* 211 (1994) 101–122.
- [83] H.C. Schneider, J. Aktaa, R. Rolli, Small fracture toughness specimen for post irradiation experiments, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 599–602.
- [84] G.E. Lucas, G. Odette, H. Matsui, A. Moslang, P. Spatig, J. Rensman, T. Yamamoto, The role of small specimen test technology in fusion materials development, *J. Nucl. Mat.* 367–370 (2007) 1549–1556.
- [85] S. Gravier, M. Colombier, A. Safi, N. Andre, A. Boe, J.-P. Rasquin, T. Pardoën, New on-ship nanomechanical testing lab, *JMEM* 18 (3) (2009) 555–569.
- [86] M. Colombier, A. Boe, C. Brugger, J.-P. Rasquin, T. Pardoën, Imperfection sensitive ductility of aluminium thin films, *Scripta Mat.* 62 (2010) 742–745.
- [87] Kazuo Todani, JAEA Activities towards Environmental restoration of Fukushima, 16 October 2011, Headquarters of Fukushima partnership, October 16, 2011, operations, Japan Atomic Energy Agency, JAEA.
- [88] Masaru Moriya, Fukushima Decontamination Promotion Team, LNER headquarters, remediation efforts in Japan, October 16, 2011.
- [89] Ministry of Agriculture, of Forestry and Fisheries-MAAF, Development of technologies for the removal of radioactive materials from agricultural soil in Japan, December 2011.
- [90] S. Marguet, La physique des réacteurs nucléaires, Collection EDF/R&D, Editions TEC et DOC, Lavoisier, 2011.
- [91] T. Matsui, Deciphering the measured ratios of iodine –131 to cesium 137 at the Fukushima reactors, University of Tokyo, 27 June 2011.
- [92] R. Vogt, J. Randrop, Event-by-event study of neutron observables in spontaneous fission and thermal fission, 17 September 2011; arXiv:1109.3788v1.
- [93] M. Salvatores, A. Zaetta, High level nuclear waste management, how physics can help, *Interdiscip. Sci. Rev.* 23 (3) (1998).
- [94] R. Dautray, Les isotopes du plutonium et leurs descendants dans le nucléaire civil, TEC/DOC, Lavoisier, 2005.
- [95] Pierre Guéguenat, Pierre Germain, Henri Métivier, Radionuclides in the Oceans, Inputs and Inventories, Les éditions de physique, Institut de protection et de sûreté nucléaire, 1996.
- [96] G. Brumfiel, Fallout forensics hike radiation toll, *Science* 478 (18 October 2011) 435–436.
- [97] M. Salvatores, G. Palmiotti, Radioactive waste partitioning and transmutation within advanced fuel cycles: Achievements and challenges, *Prog. Part. Nucl. Phys.* 66 (2011) 144–166.
- [98] M. Salvatores, Nuclear fuel cycle strategies including partitioning and transmutation, *Nucl. Eng. Des.* 235 (2005) 805–807.
- [99] M. Salvatores, Physics features comparison of TRU burners: Fusion/fission Hybrids, accelerator-driven systems and low conversion ratio critical fast reactors, *Ann. Nucl. Energy* 36 (2009) 1653–1662.
- [100] World Energy Outlook, International Energy Agency, OECD/IEA, 2010.
- [101] World Energy Outlook, International Energy Agency, OECD/IEA, 2011.
- [102] International Energy Agency, World Energy Outlook, OECD/IEA, 2011, 659 pp., <http://www.iea.org>.
- [103] Glenn Seaborg, The plutonium story, in: Ronald Kathren, Jerry B. Gough, Gary T. Benefield (Eds.), *The Journals of Professor Glenn T. Seaborg, 1939–1946*, Battelle Press, 1994.
- [104] M. Ashby, Materials for low carbon power, preprint, 2011.
- [105] J. Magill, G. Pfennig, J. Galy, Chart of the Nuclides, 7th edition, Institute for Transuranium Elements, Joint Center of the European Commission, Karlsruhe, 2006.
- [106] D.J.C. Mackay, *Information Theory, Inference and Learning Algorithms*, Cambridge University Press, 2003, 2007.
- [107] H. Nifenecker, Le nucléaire, un choix raisonnable?, EDP Sciences, 2011.
- [108] Daniel Massignon, Gaseous diffusion, in: S. Villani (Ed.), *Uranium Enrichment*, Springer Verlag, 1979, pp. 123–131.
- [109] D. Dubbers, M. Schmidt, The neutron and its role in cosmology and particle physics, VIB1, neutron lifetime, *Rev. Mod. Phys.* 83 (2011), article number 1111.
- [110] L. Hodeson, et al., *Critical Assembly, A Technical History of Los Alamos*, Cambridge University Press, 1993.